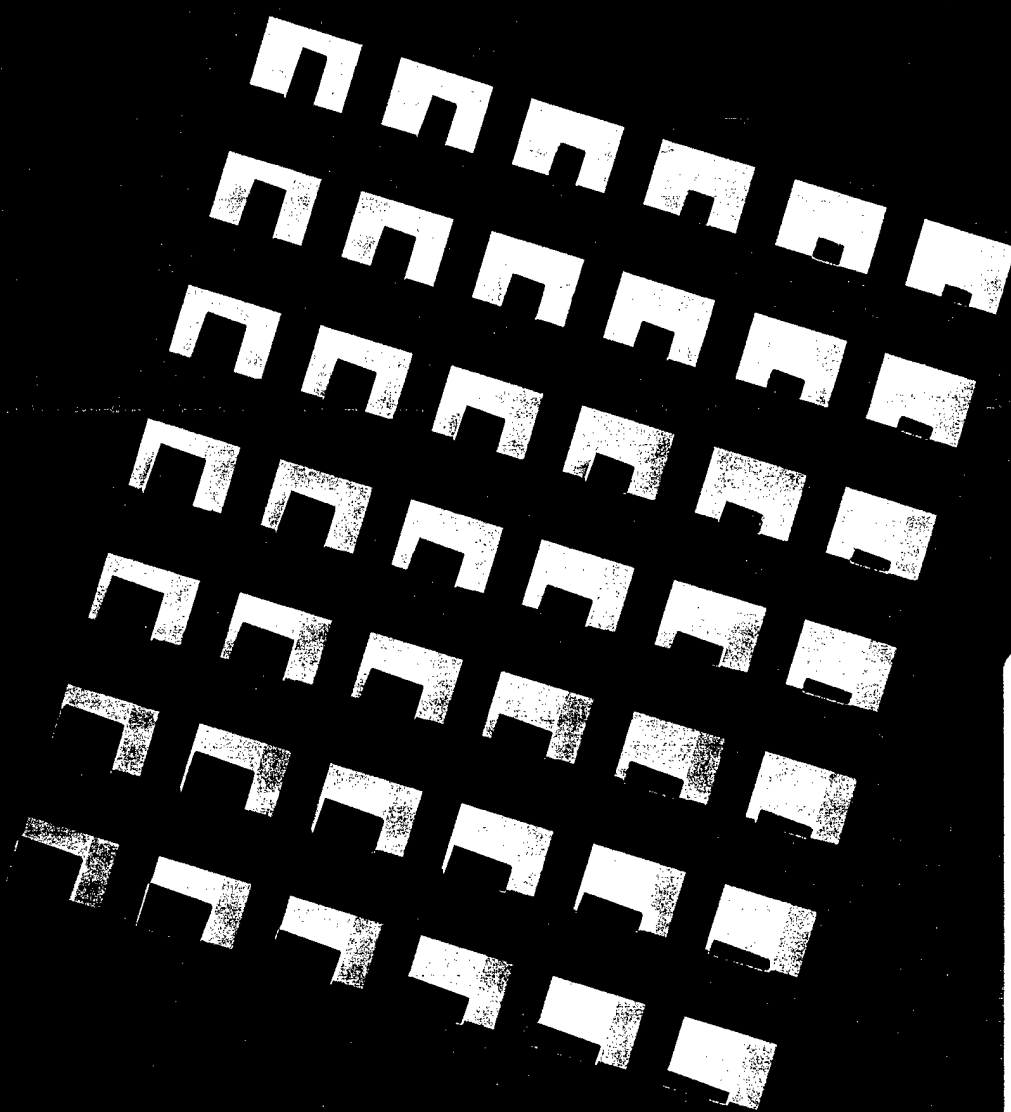


TNO-rapport
PML 1997-A69

De responsie van energetische materialen als gevolg van externe opwarming

TNO Prins Maurits Laboratorium



19980626 027



TNO-rapport
PML 1997-A69

De responsie van energetische materialen als gevolg van externe opwarming

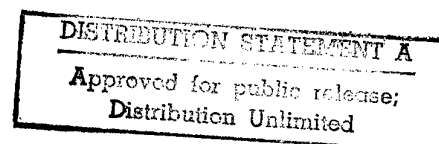
TNO Prins Maurits Laboratorium

Lange Kleiweg 137
Postbus 45
2280 AA Rijswijk

Telefoon 015 284 28 42
Fax 015 284 39 58

Datum
april 1998

Auteur(s)
Ir. J.H.G. Scholtes
Dr. B.J. van der Meer



Rubricering
Vastgesteld door : Ing. J.A. van Gool
Vastgesteld d.d. : 3 februari 1998
(Deze rubricering wijzigt niet)

Titel : Ongerubriceerd
Managementuittreksel : Ongerubriceerd
Samenvatting : Ongerubriceerd
Rapporttekst : Ongerubriceerd
Bijlagen A - C : Ongerubriceerd

Alle rechten voorbehouden.
Niets uit deze uitgave mag worden
vermenigvuldigd en/of openbaar
gemaakt door middel van druk, foto-
kopie, microfilm of op welke andere
wijze dan ook, zonder voorafgaande
toestemming van TNO.

Indien dit rapport in opdracht werd
uitgebracht, wordt voor de rechten en
verplichtingen van opdrachtgever en
opdrachtnemer verwezen naar de
Algemene Voorwaarden voor Onder-
zoeksoptredens aan TNO, dan wel
de betreffende terzake tussen de
partijen gesloten overeenkomst.
Het ter inzage geven van het
TNO-rapport aan direct belang-
hebbenden is toegestaan.

Exemplaar nr. : 1
Oplage : 25
Aantal pagina's : 60 (incl. bijlagen,
excl. RDP & distributielijst)
Aantal bijlagen : 3

© 1998 TNO

DTIC QUALITY INSPECTED 1

TNO Prins Maurits Laboratorium is onderdeel
van de hoofdgroep TNO Defensieonderzoek
waartoe verder behoren:

TNO Fysisch en Elektronisch Laboratorium
TNO Technische Menskunde



Nederlandse Organisatie voor toegepast-
natuurwetenschappelijk onderzoek TNO

Managementuittreksel

Titel : De responsie van energetische materialen als gevolg van externe opwarming
Auteur(s) : Ir. J.H.G. Scholtes en Dr. B.J. van der Meer
Datum : april 1998
Opdrachtnr. : A95KL408
Rapportnr. : PML 1997-A69

In het kader van het project 'Feasability study of an IM-Ignitor' is onderzoek gedaan naar de ontwikkeling van een nieuwe ontsteker voor een raketsysteem. Het doel van dit onderzoek was een ontsteker te ontwikkelen met een lagere ontsteektemperatuur zodat de kans voor raketsystemen op een IM-typeclassificatie vergroot zou worden.

In het bovengenoemde project zijn veel uiteenlopende aspecten onderzocht. Een groot deel daarvan betrof het onderwerp 'Cook-off'. Door enerzijds de tijdslimiet en anderzijds budgettaire redenen konden niet alle aspecten op een gewenste manier afgehandeld worden. Omdat een aantal zaken interessant is voor het project 'Thermische Initiatie' (TI onder opdrachtnummer A95KL408) is in het kader hiervan in het vorige en het huidige jaar ruimte gecreëerd om een aantal van die aspecten te evalueren en af te ronden. De samenvatting van de resultaten en de evaluatie van het bovengenoemde 'Feasability'-project zijn reeds gerapporteerd [3]. De interessante ontwikkelingen op het gebied van computermodellering en de resultaten van een aantal temperatuur-, reactiekinetiek- en drukkerekeningen en nieuwe berekeningen met de gegevens uit het feasibility-project worden in dit rapport beschreven.

Er is een aantal computermodellen ontwikkeld waarmee, ofwel eenvoudige thermisch-chemische berekeningen ofwel meer complexe gecombineerde thermisch-chemische drukkerekeningen uitgevoerd kunnen worden. Naast gegevens uit de literatuur zijn thermische- en reactiesnelheidsparameters bepaald die nodig zijn voor deze modellen. Met de ontwikkelde computerprogramma's zijn vervolgens TNO Prins Maurits Laboratorium (TNO-PML) Cook-off buis-, raketsysteem- en slow Cook-off-berekeningen uitgevoerd en vergeleken met de experimentele waarden.

Met de resultaten van de temperatuurprofielberekeningen van het raketsysteem is een beter inzicht verkregen in het warmtetransport door het systeem. Dit kan bij de ontwikkeling van nieuwe systemen een bijdrage leveren aan het ontwerp. Een betere inschatting van een mogelijke responsie van een raketsysteem op een thermische stimulus kan gemaakt worden indien naast deze berekeningen de resultaten van de verschillende Cook-off experimenten toegevoegd worden.

Het blijkt dat de reactiesnelheidsvergelijkingen die bepaald zijn voor de stuwstoffen HTPB/AP en PPG/AP/AN niet overeenkomen met de werkelijkheid. Hiervoor wordt een aantal redenen genoemd waaruit blijkt dat de bepaling van de reactiesnelheidsvergelijking van energetische materiaal complexer is dan in eerste instantie aangenomen werd.

Met het gebruik van de computermodellen met gegevens uit de literatuur, de Tarver-McGuire reactiekinetiek en gecombineerde drukberekeningen zijn goede resultaten bereikt. Ook uit eerdere berekeningen is gebleken dat aan de hand van dit model met nulde orde kinetiek al goede resultaten behaald konden worden [26]. De temperatuurprofielberekeningen geven een goede indruk van de temperatuurgradiënten van het testitem die zeer goed overeenkomen met de experimentele waarden. Met behulp van de drukberekeningen wordt een stopcriterium voor de simulaties verkregen die beter met de werkelijkheid overeenkomen dan slechts zuiver thermische-chemische berekeningen.

Samenvatting

In het kader van het project 'Feasibility study of an IM-Ignitor' is onderzoek gedaan naar de ontwikkeling van een nieuwe ontsteker voor een raketsysteem. In dit project zijn veel uiteenlopende aspecten onderzocht. Een groot deel daarvan betrof het onderwerp Cook-off en is daarom interessant voor het project 'Thermische Initiatie'. De interessante ontwikkelingen op het gebied van computermodellering en de resultaten van een aantal temperatuur-, reactiekinetiek- en drukberekeningen en nieuwe berekeningen met de gegevens uit het feasibility project worden in dit rapport uitgebreid beschreven. Er is een aantal computermodellen ontwikkeld waarmee, ofwel eenvoudige, thermisch-chemische berekeningen ofwel meer complexe gecombineerde thermisch-chemische-drukberekeningen uitgevoerd kunnen worden. Met de ontwikkelde computerprogramma's zijn vervolgens TNO Prins Maurits Laboratorium (TNO-PML) Cook-off buis-, raketsysteem- en slow Cook-off-berekeningen uitgevoerd en vergeleken met de experimentele waarden. Met de resultaten van de temperatuurprofielberekeningen van het raketsysteem is een beter inzicht verkregen in het warmtetransport door het systeem. Dit kan bij de ontwikkeling van nieuwe systemen een bijdrage leveren aan het ontwerp. Verder is gebleken dat de bepaling van de reactiesnelheidvergelijking van energetische materiaal complexer is dan in eerste instantie aangenomen werd. Met het gebruik van de computermodellen met gegevens uit de literatuur, de Tarver-McGuire reactiekinetiek en gecombineerde drukberekeningen zijn goede resultaten bereikt. De temperatuurprofielberekeningen geven een goede indruk van de temperatuurgradiënten van het testitem die zeer goed overeenkomen met de experimentele waarden. Met behulp van de drukberekeningen wordt een stopcriterium voor de simulaties verkregen die beter met de werkelijkheid overeenkomen dan slechts zuiver thermische-chemische berekeningen.

Inhoud

Managementuittreksel	2
Samenvatting	4
1 Inleiding	6
2 Theorie	8
2.1 Het drukmodel	8
3 Computermodellen en werkzaamheden	12
3.1 De numerieke code ABAQUS	12
3.2 De implementatie van het drukmodel in het Cook-off model van ABAQUS	12
3.3 De gridmodellen	14
3.4 Typeberekeningen	15
4 Resultaten van fase 1	17
4.1 Verificatieberekeningen met HMX-PBX in TNO-PML Cook-off buis	17
4.2 Thermische geleidingsprofielen van de raketmotor	19
5 Resultaten van fase 2	21
5.1 Inleiding	21
5.2 Karakteriseringsexperimenten versus berekeningen	21
5.3 HMX-PBX berekeningen versus experiment	22
5.4 Slow Cook-off berekeningen versus het experiment	24
6 Discussie	26
7 Conclusies	30
8 Referenties	32
9 Ondertekening	35
Bijlagen:	
A ABAQUS inputfile en subroutine HETVAL	
B Visualisatie van computerberekeningen	
C Resultaten van karakteriseringsmetingen en simulaties	

1 Inleiding

In het kader van het project 'Feasability study of an IM-Ignitor' is onderzoek gedaan naar de ontwikkeling van een nieuwe ontsteker voor een raketsysteem. Het doel van dit onderzoek was een ontsteker te ontwikkelen met een lagere ontsteektemperatuur zodat de kans voor raketsystemen op een IM-typeclassificatie vergroot zou worden.

In het bovengenoemde project zijn veel uiteenlopende aspecten onderzocht. Een groot deel daarvan betrof het onderwerp 'Cook-off'. Door enerzijds de tijdslimiet en anderzijds budgetaire redenen konden niet alle aspecten op een gewenste manier afgehandeld worden. Omdat een aantal zaken interessant is voor het project 'Thermische Initiatie' (TI onder opdrachtnr A95KL408) is in het kader van in het vorige en het huidige jaar ruimte gecreëerd om een aantal van die aspecten evalueren en af te ronden. De samenvatting van de resultaten en de evaluatie van het bovengenoemde 'Feasability'-project zijn reeds gerapporteerd [3]. De interessante ontwikkelingen op het gebied van computermodellering en de resultaten van een aantal temperatuur-, reactiekinetiek- en drukberekeningen en nieuwe berekeningen met de gegevens uit het 'Feasability'-project worden in dit rapport beschreven.

Algemeen is bekend, dat onder meer de slow Cook-off test problemen oplevert voor een IM-classificering van munitie-items. Bij langzame opwarming bevindt de gehele stof zich op een verhoogde temperatuur, zodat de mechanische eigenschappen snel verslechteren en de poreusheid toeneemt. In het geval van een slow Cook-off reactie zal de thermische weglööpreactie veelal vanuit het midden van de explosive stof starten waardoor een extra opsluiting van de stof optreedt. Door de combinatie van de verslechterde mechanische eigenschappen, verhoogde poreusiteit en de interne opsluiting van de explosieve stof in combinatie met een opsluiting van het omhullende kan een verbrandingsreactie overgaan in een detonatie (DDT-overgang).

In het 'Feasability'-project is gezocht naar de mogelijkheid een raketsysteem minder-gevoelig te maken voor een (slow) Cook-off test. Om dit doel te bereiken werd, ten tijde van het project, uitgegaan van de filosofie dat, indien een ontsteker bij een lagere temperatuur dan de hoofdstuwstof ontsteekt (ontleedt), de raket op een normale wijze kan functioneren mits de hoofdclading bij deze ontsteektemperatuur nog een normaal brandgedrag vertoont. Verder is bij deze filosofie de aanname gedaan dat de hoofdclading bestaat uit een HTPB/AP-stuwstof omgeven door een metalen casing. De keuze voor de ontstekerstuwstof is gevallen op een PPG/AP/AN stuwstof die, ten gevolge van de toevoeging van AN, bij een lagere temperatuur zou moeten ontleden en ontsteken.

Om in een Cook-off test de ontsteker vroeger te laten ontsteken dan de hoofdclading moet de warmtestroom in de raket zodanig zijn dat de ontsteker eerder op ontsteek-

temperatuur is dan de hoofdlading. Daar de ontsteker zich in een raket altijd in het centrum bevindt, wordt niet vanzelf aan deze eis voldaan. Om beter inzicht te krijgen in de temperatuurprofielen in een raket, zijn computersimulaties uitgevoerd om deze warmteprofielen bij langzame en intermediate opwarmsnelheid te berekenen.

Er is tijdens het 'Feasibility project' voor een stap voor stap benadering van de oplossing voor dit complexe probleem gekozen. Hierdoor zou bij uitloop of niet bruikbare modelparameters van andere werkpakketten met de reeds gegenereerde resultaten toch een zo goed mogelijke conclusie getrokken kunnen worden. In het vervolg van het rapport zal over 'een eerste fase' gesproken worden indien het gegevens uit de 'Feasibility'-studie aangaat, en over 'een tweede fase' indien het vervolgwerkzaamheden betreft die in het kader van het project 'Thermische Initiatie' uitgevoerd zijn.

Als eerste stap, in fase één, werd een model van de TNO Prins Maurits Laboratorium (TNO-PML) Cook-off buis met een HMX-PBX [4] doorgerekend en vergeleken met experimentele resultaten. In een tweede stap werd na een uitgebreide analyse van verschillende raketsystemen een rekengrid van het raketsysteem gemaakt. Met dit model werden in een derde stap thermische profielen berekend. Tevens werden de opwarmsnelheid en de geleidingscoëfficiënt van het materiaal, dat de warmtestroom in de richting van de ontsteker bepaald, gevarieerd.

Eveneens is met behulp van thermogravimetrie de reactiekinetiek van de kruiden bepaald en zijn TNO-PML Cook-off experimenten met de energetische materialen uitgevoerd. Ook is een aantal thermische parameters zoals de soortelijke warmte en de warmtegeleidingscoëfficiënt bepaald.

Met behulp van de ontwikkelde programmatuur en gegevens zijn, in de tweede fase, in het kader van het project 'Thermische Initiatie' berekeningen uitgevoerd. Hieruit zou moeten blijken of de berekeningen met het model slechts een globale indruk van de temperatuurprofielen zouden kunnen verschaffen dan wel een goede schatting van de druk, explosietijd en -temperatuur. Met de reactiekinetiek zullen tenslotte twee berekeningen uitgevoerd worden aan het raketmodel.

In hoofdstuk 2 wordt de theorie uiteengezet omtrent het drukkerekeningsmodel, in hoofdstuk 3 wordt de implementatie van het model in de computercode ABAQUS [2] beschreven, worden de gridmodellen toegelicht en de verrichtte werkzaamheden besproken. In hoofdstuk 4 worden de resultaten van fase 1, het 'Feasibility'-project, gegeven, gevolgd door de resultaten van fase 2 in hoofdstuk 5. Hoofdstuk 6 bevat de discussie gevolgd door de conclusies in hoofdstuk 7.

2 Theorie

2.1 Het drukmodel

Het gebruikte model is een gedeelte van een model zoals beschreven staat in onder andere 'A Constitutive mechanical model for energetic materials' van M.L. Hobbss, M.R. Baer en R.J. Gross [6]. Het model gaat uit van een 'bubble' (bellen) mechanisme, hetgeen inhoudt dat bij de decompositie van veel energetische materialen holten in de explosieve stof ontstaan ten gevolge van de omzetting van vaste stof in gas. Aan de hand van een beginporeusiteit, de hoeveelheid omgezette stof en de vrijgekomen hoeveelheid gas, kan een schatting gemaakt worden van de lokale druk in deze holten. Daar er van een poreusiteit van de explosieve stof uitgegaan kan worden, vindt diffusie van het gas plaats waardoor er sprake is van een globale drukstijging in de buis.

Ten gevolge van een beginporeusiteit bevat een energetisch materiaal een aantal microbellen (bubbles) per eenheid van ruimte (cel of computerelement). Door de ontledingsreactie van de explosieve stof zullen deze microbellen groeien in deze poreusiteiten, ook wel defecten genoemd. In het model hebben de bellen een externe diameter b ; een interne diameter a en een wanddikte van $(b-a)$. In dit eenvoudige model stelt b de gemiddelde afstand van deze defecten voor en is a de grootte van het defect. De inwendige bol bevat gas met een initiële dichtheid ρ_g^0 en wordt gevuld met decompositiegassen. De begindichtheid van de explosieve stof is ρ_c^0 . The initiële binnenstraal a_0 en buitenstraal b_0 van de bellen kunnen bepaald worden aan de hand van initiële gasvolume fractie ϕ_0 en de bellendichtheid N_0 met de volgende formules

$$a_0 = b_0 \phi_0^{1/3} \quad (1)$$

en

$$b_0 = (3 / 4\pi N_0)^{1/3} \quad (2)$$

met ϕ_0 de initiële gasvolume fractie en N_0 de bellendichtheid in het materiaal.

Omdat slechts een gedeelte van het model gebruikt wordt om de inwendige druk ten gevolge van gasontwikkeling te berekenen, worden van de zes algebraïsche hoofdvergelijkingen er drie uit het beschreven model [6] gebruikt. Een vergelijking voor het behoud van de gasmassa (3), behoud van totale massa (4) en de gasfase-toestandsvergelijkingen (5).

De vergelijking voor behoud van de gasmassa luidt als volgt:

$$\rho_g = \frac{\rho_g^0 \phi_0 \psi}{\phi} \quad (3)$$

Hierin zijn ρ_g en ρ_g^0 respectievelijk de dichtheid en initiële dichtheid van het gas, ψ de genormaliseerde gasmassa. Met de aanname $b=b_0$, omdat aangenomen wordt dat de buis nauwelijks uitzet bij druktoename, volgt:

$$\phi = (1 - \phi_0)Fe + \phi_0 \quad (3a)$$

met Fe de effectieve waarde van de verhoudingen van de massa van de gasproductie en de initiële vaste stofmassa in de eenheidscel. Deze waarde is eenvoudig te bepalen door de berekende massafractie van de decompositiegassen F te vermenigvuldigen met een dimensieloze factor $(1-X_c)$. De massafractie F wordt door de reactiesnelheidsvergelijkingen bepaald. Op de parameter X_c wordt in de gasfasevergelijking nog dieper ingegaan. De eerdergenoemde parameter ϕ_0 kan eenvoudig bepaald worden met de vergelijking:

$$\phi_0 = 1 - \frac{\rho_c}{\rho_{th}} \quad (3b)$$

Fe ziet er dan als volgt uit.

$$Fe = F(1 - X_c) \quad (3c)$$

De materiaalparameter λ wordt als volgt gedefinieerd.

$$\lambda = \frac{\rho_c^0}{\rho_g^0} \left(\frac{1}{\phi_0} - 1 \right) + 1 \quad (3d)$$

De vergelijking voor het totale massabehoud ziet er als volgt uit.

$$\rho_c = \rho_g \left(\frac{\lambda}{\psi} - 1 \right) / \left(\frac{1}{\phi} - 1 \right) \quad (4)$$

met ρ_c de dichtheid van de vaste stof. Uiteindelijk kan met behulp van de volgende vergelijking, de gasfasetoestandsvergelijking, de druk P_g in een eenheidscel berekend worden.

$$P_g = z \rho_g RT / M_w \quad (5)$$

met R de universele gasconstante, T de temperatuur in de eenheidscel en M_w is het gemiddelde moleculaire gewicht in de gasfase. De BKW-compressibiliteitsfactor z is gedefinieerd als volgt.

$$z = 1 + x e^{\beta x} \quad (5a)$$

en de BKW-parameter x is gedefinieerd als volgt.

$$x = \rho_g \kappa \sum_i y_i k_i / (M_w (T + \theta)^\alpha) \quad (5b)$$

Voor de gasfasetoestandsvergelijking (4) is in het model gebruikgemaakt van de zogenaamde BKW-toestandsvergelijking. Deze voldoet goed bij hoge gasdrukken en is gedefinieerd voor hoge gasdichtheden. Met behulp van de TIGER-code [7] (Cowperthwaite and Zwisler, 1973) en deze BKW-toestandsvergelijking (Hobbs and Baer, 1993) [8] kan het gemiddelde gasfase moleculaire gewicht M_w , het covolume $\sum y_i k_i$ en massafractie van de eindtoestand van de vloeistof- en vaste stoffase van ontstekingsproducten X_c , bepaald worden. Het blijkt dat, onder andere voor de energetische materialen NC, HMX, RDX, TATB en TNT voor hogere drukken en temperaturen waarbij de compressibiliteit z groter is dan 1, die eindproducten relatief constant zijn en daarmee X_c . Dit houdt tevens in dat het gemiddelde gasfasemoleculaire gewicht M_w en het covolume $\sum y_i k_i$ vrij constant zijn bij hoge drukken en temperaturen. Met andere woorden, één waarde kan voor de totale berekening gebruikt worden onder de condities die verwacht worden bij een voorinitiatiefase in een Cook-off proces.

2.1.2 Schatting van de globale druk in de buis

Nadat via bovenstaande vergelijkingen de druk per eenheidscel bepaald is, kan een schatting gemaakt worden voor de globale druk in de buis. Hiervoor is slechts gebruikgemaakt van een eenvoudige theorie om een schatting te krijgen van de gemiddelde druk. Uitgegaan wordt van n eenheidscellen met elk een eigen temperatuur T_n , een volume V_n , een druk P_n en een gasvolumefractie ϕ_n . In een tijdsinterval zal ten gevolge van de decompositie de druk in een eenheidscel veranderen omdat er vaste stof in gas omgezet wordt. Hierdoor zal ook de gasvolumefractie per cel veranderen. Dit zal ten gevolge van de temperatuurverschillen in de ene cel anders zijn dan de andere. Met behulp van de volgende formules wordt een schatting gemaakt van de einddruk P_e . In een eenheidscel nemen we aan dat de ideale gaswet geldt:

$$P_n V_n = n_n R T_n \quad (6)$$

Nadat diffusie van het gas plaatsgevonden heeft, moet gelden dat het aantal molen gas voor en na gelijk is:

$$n_1 + n_2 + n_3 + \dots + n_n = n_1^e + n_2^e + n_3^e + \dots + n_n^e \quad (7)$$

Waarbij het superscript e de eindtoestand aanduidt. Omdat het grootste gedeelte van een eenheidscel uit vaste stof bestaat wordt ervan uitgegaan dat in de eindtoestand de temperatuur van het gas gelijk is aan de temperatuur van de gehele eenheidscel en geldt er:

$$\frac{P_1 V_1}{T_1 R} + \frac{P_2 V_2}{T_2 R} + \dots + \frac{P_n V_n}{T_n R} = \frac{P_e V_1}{T_1 R} + \frac{P_e V_1}{T_2 R} + \dots + \frac{P_e V_1}{T_n R} \quad (8)$$

Na vermenigvuldiging met R en buiten haakjes halen van P_e wordt de volgende formule voor de einddruk in de buis gevonden:

$$P_e = \frac{\frac{P_1 V_1}{T_1} + \frac{P_2 V_2}{T_2} + \dots + \frac{P_n V_n}{T_n}}{\frac{V_1}{T_1} + \frac{V_2}{T_2} + \dots + \frac{V_n}{T_n}} \quad (9)$$

3 Computermodellen en werkzaamheden

3.1 De numerieke code ABAQUS

Voor de berekeningen is de eindige elementen code ABAQUS gebruikt. Met dit programma kunnen naast sterkteberekeningen ook thermische berekeningen uitgevoerd worden. Naast de verschillende type randvoorwaarden kunnen interne warmtebronnen, via subroutines, gedefinieerd worden. Voor de decompositiewarmte van een explosieve stof is in het verleden reeds een speciale 'Fortran 77'-subroutine geschreven. Voor een uitvoerige beschrijving hiervan wordt naar het rapport 'Thermische berekeningen aan de TNO-PML Cook-off test in ABAQUS met de Tarver-McGuire reactiekinetiek' [5]. De decompositiereacties hebben een Arrhenius-structuur waarbij de reactiesnelheid afhankelijk is van de concentraties van de beginproducten en de temperatuur. Voor de eerste modelverificatieberekeningen met HMX-PBX zal gebruikgemaakt worden van de zogenaamde Tarver-McGuire-reactiekinetiek. Hierbij verloopt de decompositiereactie via meerdere endo- en exotherme reactiestappen. Voor deze reactiekinetiek zijn de waarden uit de literatuur gebruikt. De decompositiereacties van de AP/HTPB en AP/AN/PPG stuwstoffen zijn sterk afhankelijk van allerlei additieven zodat waarden uit de literatuur niet gebruikt kunnen worden. Daarom zijn de parameters voor deze stuwstoffen via thermogravimetriemetingen (TGA) bepaald.

3.2 De implementatie van het drukmodel in het Cook-off model van ABAQUS

Als uitgangspunt voor het drukmodel is het TNO-PML Cook-off model genomen met de subroutine HETVAL, zoals beschreven staat in het rapport 'Thermische berekeningen aan de TNO-PML Cook-off test in ABAQUS met de Tarver-McGuire reactiekinetiek' [5]. Naast wat kleine veranderingen in de invoerfile voor de rekencode ABAQUS, is de implementatie van het drukmodel hoofdzakelijk te vinden in de subroutine HETVAL (zie bijlage A). In het uitgangsmodel vindt in deze subroutine de berekening van de reactiesnelheidsvergelijkingen per eenheidscel plaats, gevolgd door een berekening van de warmteproductie/-verlies ten gevolge van de ontledingsreacties. Met de berekende gasproductiefractie F_g kan vervolgens de lokale druk in de eenheidscel berekend worden.

Voordat de globale druk berekend kan worden moet nog een aantal parameters bepaald worden. Omdat de subroutine HETVAL per eenheids(reken)cel aangeroepen wordt en omdat er voor de berekening van de globale druk P_g een som van een aantal parameters van alle eenheidscellen berekend moet worden, is het van belang een aantal parameterwaarden in de subroutine te kennen. Voor het doorgeven van

het nummer van de iteratieslag van de berekening, het nummer van de eenheidscel en het volume van deze cel is een aantal regels in de subroutine toegevoegd.

De volgorde van berekenen is als volgt.

- Nadat de gasproductiefactor F_g bepaald is (met behulp van de aanroep van de subroutine *odeint(..)*, zie bijlage A onder het kopje 'aanroep van het oplossen van de diff vlg...'), worden de waarden van de *iteratieslag*, het *nummer* en het *volume* van de eenheidscel opgehaald (kopjes 'berekeningen voor node en elementen' en 'ophalen van volume van eenheidscel').
- Daarna wordt de lokale druk van de betreffende eenheidscel berekend via een subroutine KPRESS.
- Daarna wordt gecheckt of de volgende iteratieslag van de berekening al gestart is. Is dit wel het geval dan wordt de waarde van de globale druk weggeschreven in een file. Indien de waarde van de globale druk groter is dan 400 MPa, zal de druk, met een aantal andere parameters, als functie van de tijd worden weggeschreven.
- Dit wordt gevolgd door de berekening van de som van de parameters die nodig zijn voor de globale druktoename (kopje 'ophogen van de som voor de globale drukberekening'). De subroutine eindigt bij labelnummer 200 en spring terug naar het hoofdprogramma.

In tabel 1 is een opsomming gegeven van de gebruikte parameters in het computermodel voor HMX-PBX.

Tabel 1: Gegevens voor HMX-PBX voor computerberekeningen.

Tarver-McGuire Kinetiek: HMX-PBX (85% HMX)	
Decomp. warmte q_1 (J/kg) 10^{-6} (factor 10 kleiner)	- 0,0418
Decomp. warmte q_2 (J/kg) 10^{-6}	1,254
Decomp. warmte q_3 (J/kg) 10^{-6}	5,016
Freq. factor $\ln(Z_1)$ (1/s)	48,7
Freq. factor $\ln(Z_2)$ (1/s)	37,5
Freq. factor $\ln(Z_3)$ (1/s)	28,1
Activeringsenergie/ gasconst. E_1/R (K) 10^{-3}	26,5
Activeringsenergie/ gasconst. E_2/R (K) 10^{-3}	22,2
Activeringsenergie/ gasconst. E_3/R (K) 10^{-3}	17,2
Soortelijke warmte C_p (J/kg-K)	957,4+2.28182*T
Soortelijke geleidingscoëf. λ (J/m-s-K)	0,317
Max. theoretische dichtheid ρ_{th}	1,640
Praktische dichtheid ρ	1,6166±0,01
Smelpunt (K)	520
Smeltwarmte (J/kg) 10^{-5}	2,09
BKW-parameters en drukvergelijkingen	
BKW- α	0,5
BKW- β	0,284
BKW-K	11,85
BKW- θ	10200
Eindtoestand vast-vloeistof fractie X_c	0,32
Moleculaire gewicht M_w (mol)	33,3
Covolume Σy_k	471
Initiële dichtheid gas ρ_g^0 (kg/m ³) 10^3	1,29

3.3 De gridmodellen

Voor de TNO-PML Cook-off buis wordt gebruikgemaakt van een reeds bestaand grid zoals in figuur B.1 (bijlage B) is weergegeven. Het betreft hier een langsddoorsnede van een buis van 50 cm met 2 doppen waarbij in het rekenmodel ten gevolge van symmetrieassen slechts een vierde deel van de doorsnede doorgerekend hoeft te worden.

In figuur B.2 in bijlage B is het gebruikte model van de mogelijke raketmotor gegeven. Het gebruikte raketmodel heeft een oorspronkelijke lengte van 1550 mm waarvan slecht 604 mm gemodelleerd is. De totale straal van de raket is 127 mm. De dikte van de stalen casing bedraagt 2,2 mm, van de 'inhabitor' 2 mm en van de liner bedraagt de dikte 1 mm. De straal van de binnenboring is 30 mm. Hierdoor is de dikte van de stuwstof in de hoofdmotor 91,8 mm. In het model heeft de ontsteker een totale lengte van 166 mm en bedraagt de buitendiameter 40 mm. Deze bezit een casing van 1,35 mm dikte een interne thermische protectie van HTPB van 2 mm en een webdikte van de propellant van 3 mm. De ontsteker is via een 'Save and Arm Device' (SAD) aan de raket verbonden (in het model rood aangegeven).

Deze vormt de 'bottle neck' voor het warmtetransport in de richting van de ontsteker. In de berekeningen zal de warmtegeleidingscoëfficiënt van dit materiaal gevarieerd worden om de invloed hiervan op het opwarmprofiel te kunnen bepalen.

Het derde gridmodel is een model van de 'igniter' zoals deze gebruikt is een slow Cook-off test. Het tweedimensionale model bestaat uit een deel van de igniter. De straal van de stalen mantel, met een dikte van 1,35 mm, is 14,2 mm. Hierin bevindt zich een stuwstoflaag met een dikte van 3 mm zodat een cilindervormige ruimte met een straal van 9,85 mm overblijft, waarin zich lucht bevindt.

3.4 Typeberekeningen

Met de bovenstaande beschreven gridmodellen zijn, zoals reeds vermeld, verschillende typeberekeningen uitgevoerd. Allereerst zijn berekeningen uitgevoerd om het nieuw ontwikkelde thermisch/chemisch drukmodel te verifiëren. Hierna zijn temperatuurprofielberekeningen van het ontwikkelde raketmodel uitgevoerd. De eerste serie berekeningen zijn uitgevoerd onder het 'Feasibility project', de eerste fase. In de tweede fase zijn karakteriseringsberekeningen uitgevoerd gevolgd door herhalingsberekeningen van de TNO-PML Cook-off buis maar met een lagere opwarmingsnelheid. Als laatste zijn aan de hand van de gegevens van stuwstoffen uit fase een, berekeningen uitgevoerd met het slow Cook-off gridmodel. In de volgende paragrafen worden deze berekeningen uitvoerig toegelicht.

3.4.1 Verificatieberekeningen aan de hand van HMX-PBX model; eerste fase

Uit eigen ervaring met experimenten blijkt dat in vele gevallen in een Cook-off reactie een 'responsie' optreedt voordat zelfopwarming in de explosieve stof wordt waargenomen [4]. De buis barst open ten gevolge van de drukopbouw die totstandkomt door de omzetting van de explosieve stof in gas. De hoeveelheid vaste stof die dan omgezet is is in de orde grootte van 1-5% van de vaste stof [6]. Na het experiment worden daarom grote hoeveelheden explosief materiaal teruggevonden. Het berekenen van de drukopbouw in de buis kan, naast het berekenen van de temperatuurprofielen, uitwijzen of het einde van de Cook-off reactie het gevolg van een drukopbouw of van een samengaande runaway met een drukopbouwreactie is.

In deze berekeningen wordt het nieuw ontwikkelde thermisch/chemisch drukmodel in ABAQUS aan de hand van HMX-PBX berekeningen geverifieerd. Indien bij de computerberekening de druk in de buis de breekdruk van de testbuis bereikt (240 MPa) voordat een weglooptreactie optreedt, zal het einde van de gesimuleerde test het gevolg zijn van een drukopbouw. In dit geval is de drukopbouw het bepalende stopcriterium voor de berekening. Indien de breekdruk optreedt terwijl de runaway al optreedt zal een complex systeem ontstaan waarbij de drukopbouw en de drukaflaat ten gevolge van scheurvorming met elkaar zullen wedijveren. Indien

de drukaflaat groot genoeg is, zal de reactie eindigen met een milde explosie. Indien de drukopbouw echter sterker groeit dan de drukaflaat bestaat de kans op een deflagratie-detonatie overgang. Deze berekeningen worden vervolgens met experimenten vergeleken.

3.4.2 Thermische berekeningen zonder interne bronterm met het raket-motormodel; eerste fase

Om een beter inzicht te krijgen in de temperatuurverschillen zijn voor het raket-model zuiver thermische geleidingsberekeningen uitgevoerd. In deze berekeningen bedraagt de gesimuleerde opwarmsnelheid 3,3 °C/uur en 3 °C/minuut. Verder is de geleidingscoëfficiënt van het materiaal dat de 'bottle-neck' vormt voor de warmtestroom, in de richting van de ontsteker (de SAD-cilinder), gevarieerd. Voor de geleidingscoëfficiënt van dit metaal zijn respectievelijk de waarden 10, 45 en 390 J/smK gekozen. De middelste waarde komt overeen met de geleidbaarheid van een standaardstaalsoort, de laatste is de geleidingscoëfficiënt van koper, een goede geleider, en de eerste is voor het geval er slechte contactgeleiding optreedt tussen de schoefdraden van de verschillende metalen. In deze berekeningen is voor de overige contactgeleidingen van een ideale geleiding uitgegaan. Wel zijn in het model de verschillende liners tussen de metalen omhulsels en de stuwstoffen, die de warmtestromen in de richting van de stuwstoffen beperken, meegenomen.

3.4.3 TNO-PML Cook-off berekeningen; tweede fase

Als tussenfase zijn metingen verricht met een TNO-PML Cook-off buis, gevuld met een kaliumzout, om de buis beter te karakteriseren. In combinatie met computerberekeningen is een aantal waarden voor de verschillende warmte-overdrachtscoëfficiënten tussen de verschillende materialen bepaald. Tevens is nog een aantal berekeningen uitgevoerd met HMX-PBX'en met een opwarmsnelheid van 0,01 °C/s en vergeleken met de experimentele waarden uit rapport [10].

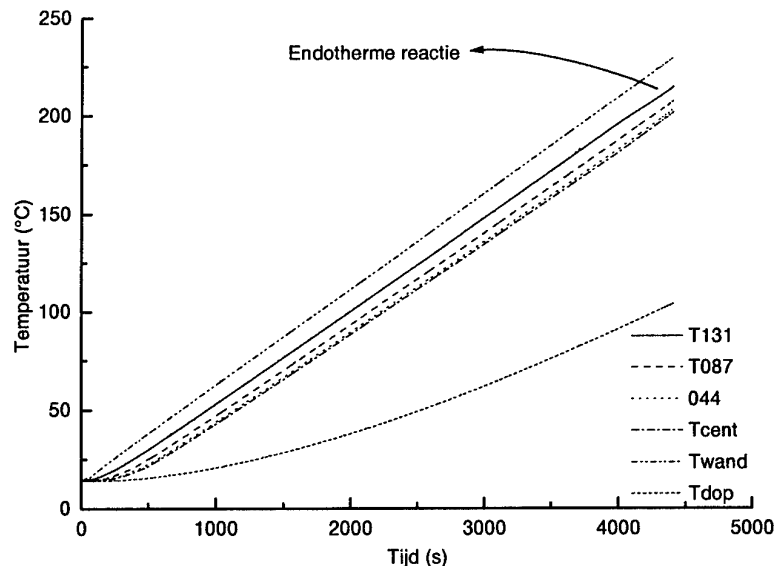
Met de reactiekinetiek van de HTPB/AP en PPG/AP/AN-stuwstoffen die bepaald zijn in de eerste fase, zijn in de tweede fase berekeningen met het TNO-PML Cook-off buismodel en een slow Cook-off testmodel uitgevoerd. Bij deze berekeningen is gebruikgemaakt van de geleidingscoëfficiënten die uit de Cook-off experimenten afgeleid zijn. De berekeningsresultaten zijn vervolgens vergeleken met experimentele waarden uit de eerste fase.

4 Resultaten van fase 1

4.1 Verificatieberekeningen met HMX-PBX in TNO-PML Cook-off buis

Met het computerprogramma zoals beschreven in hoofdstuk 3, zijn berekeningen uitgevoerd en deze zijn vergeleken met experimentele resultaten. Om een idee te geven van de temperatuurgradiënten in de TNO-PML Cook-off buis vlak voor de thermische wegløopreactie, is in figuur B.2 in bijlage B een temperatuurcontourplot van een simulatie met HMX-PBX te zien. In deze figuur is te zien dat de wegløopreactie in de explosieve stof vlak bij de wand plaatsvindt.

In figuur 1 is een temperatuur-tijd plot van een experiment met HMX-PBX gegeven. De temperaturen zijn gemeten in het centrum van de buis in radiale richting op respectievelijk 0,0, 0,44, 0,87, 1,31 en 1,75 cm ($0,0 = T_{\text{centrum}}$, $1,75 \cong T_{\text{wand}}$) van het centrum van de buis (zie ook figuur 4). Daarnaast is nog een thermokoppel T_{dop} in de dop geplaatst.

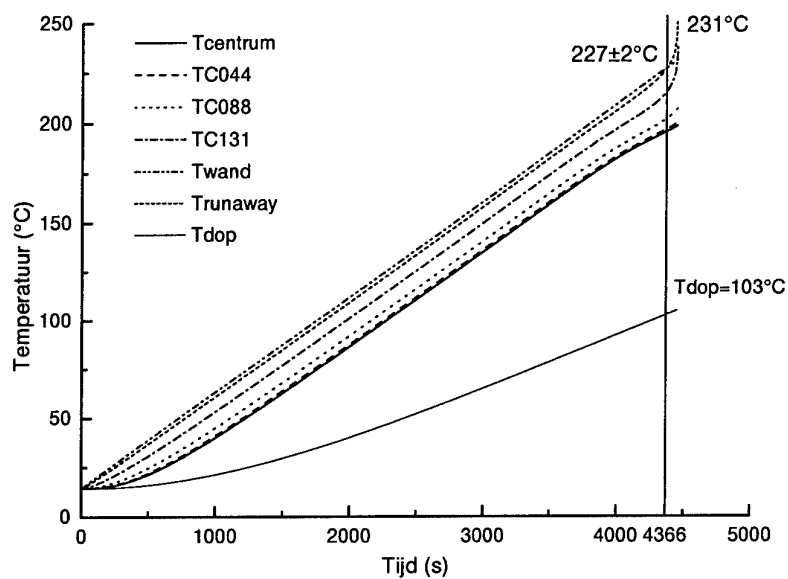


Figuur 1: Temperatuur-tijd curven van een experiment met HMX-PBX in de TNO-PML Cook-off buis.

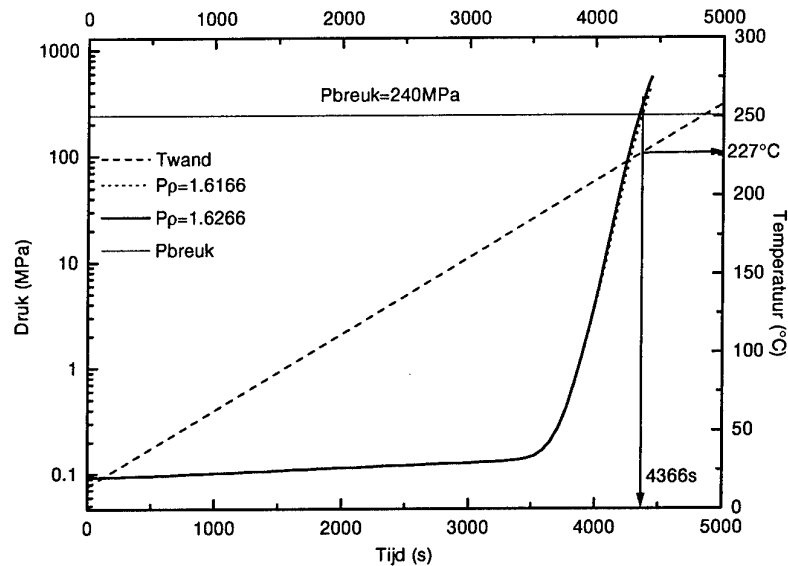
De opwarmingssnelheid in dit experiment was $0,05 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$. Na een zeer kleine afwijking van de lineaire stijging (vanaf 4000 s) van de temperaturen in het inwendige van de buis, barst de buis open ten gevolge van een drukopbouw van de gevormde gassen bij een wandtemperatuur van $229 \text{ }^{\circ}\text{C}$. De afwijking is het gevolg van endo-

therme reacties in het begin van de ontledingsreactie die meestal energie kosten omdat grote ketens opgebroken moeten worden.

In figuur 2 zijn de resultaten van de temperatuurberekeningen aan deze buis gegeven. In figuur 3 is de bijbehorende globale drukopbouw weergegeven.



Figuur 2: Resultaten van de berekening van de temperatuur-tijd curven van de TNO-PML Cook-off buis gevuld met HMX-PBX.



Figuur 3: Druk-temperatuur-tijd curven van TNO-PML Cook-off buis met HMX-PBX.

Volgens de simulatie vindt de thermische wegloopreactie plaats bij een wandtemperatuur van 231 °C. De druk bereikt in de simulatie na 4366 s de statische breekdruk van 240 MPa van de buis bij een temperatuur van 227 °C. Dit is 4 graden voordat de thermische wegloopreactie ingezet wordt. Aangezien in het experiment de buis ten gevolge van een drukopbouw gebarsten is en nog grote resten niet-gereageerd HMX-PBX teruggevonden zijn, blijkt de berekening goed met de werkelijkheid overeen te komen. Hieruit volgt dat het model een goede omschrijving van de werkelijkheid kan geven; namelijk een berekende breekdruk met een corresponderende wandtemperatuur van 227 ± 2 °C ten opzichte van een gemeten wandtemperatuur van 229 ± 2 °C waarbij de buis bezwijkt ten gevolge van een drukopbouw van de gevormde gassen.

4.2 Thermische geleidingsprofielen van de raketmotor

Na de Cook-off HMX-PBX berekeningen zijn de temperatuurcontourprofielen van de raketmotor bij twee opwarm snelheden en drie verschillende geleidingscoëfficiënten van de SAD-cilinder berekend. In bijlage B zijn de resultaten van deze berekeningen gegeven. De eerste drie temperatuurprofielen 11, 12 en 13 zijn de resultaten van de berekeningen met een opwarm snelheid van 0,05 °C/s. De contouren geven de toestand aan om het moment dat de casing een temperatuur heeft van 300 °C. Het profiel van de opwarming is dan nog niet constant maar volgens de experimenten [1] is er in het geval met een explosieve stof reeds een thermische wegloopreactie opgetreden.

Indien we naar de drie opeenvolgende contouren kijken is zichtbaar dat bij de laagste waarde van de geleidingscoëfficiënt de warmte het minst diep in de ontsteker dringt. Deze heeft nauwelijks een temperatuur van 50 °C terwijl de temperatuur in de wand en in hoofdstuwstof al een temperatuur van 300 °C heeft bereikt. Bij de twee opeenvolgende geleidingscoëfficiënten van 45 en 390 J/ms² K heeft de ontsteker al een temperatuur van meer dan 100, respectievelijk 150 °C bereikt. Toch zal bij deze opwarmsnelheid de hoofdlading eerder ontsteken dan de ontsteker daar de verschillen te groot zijn om de ontsteker eerder te laten ontsteken. Omdat er slechts een fractie van de hoofdlading op hoge temperatuur is en het overgrote deel zich nog op een relatief lage temperatuur bevindt, zullen de mechanische eigenschappen hoogstwaarschijnlijk nog zo goed zijn dat een redelijk normale verbranding van de raket verwacht kan worden. In figuur B.10 in bijlage B is aan de hand van een indicatieve berekening te constateren dat de weglööpreactie start in de rechterbovenhoek van het raketmodel.

In de drie daaropvolgende contouren zijn de eindprofielen van de simulatie weergegeven bij een opwarmsnelheid van 3,3 °C/uur. De contouren zijn de temperatuurprofielen op de tijdstippen dat de casing een temperatuur van 200 °C heeft. In deze toestand heeft zich een constant temperatuurprofiel gevormd zodat bij verdere opwarming geen veranderende verschillen in temperatuur meer zullen optreden totdat er zelfopwarming van de explosieve stof gaat optreden.

In alle contouren bij een opwarmsnelheid van 3,3 °C/uur bedraagt het maximale temperatuurverschil 12 °C. Bij de verschillende geleidingscoëfficiënten van 10, 45 en 390 J/ms² K van de SAD-cilinder zijn de temperaturen in de ontsteker respectievelijk 188, 191 en 196 °C, terwijl de temperatuur van de casing 200 °C bedraagt.

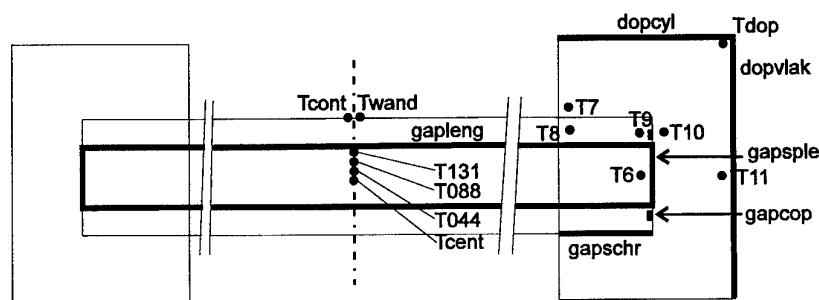
5 Resultaten van fase 2

5.1 Inleiding

In het kader van het project ‘Thermische Initiatie’ is een aantal simulaties in combinatie met experimenten uitgevoerd. Allereerst is een aantal zogenaamde karakteriseringsexperimenten uitgevoerd om de warmteoverdrachtscoëfficiënten van verschillende overdrachten in de TNO-PML Cook-off buis te bepalen. Tevens zijn HMX-PBX simulaties van de TNO-PML Cook-off buis uitgevoerd maar nu met een opwarmsnelheid van $0,01\text{ }^{\circ}\text{C/s}$, hetgeen een factor 5 langzamer is dan de simulaties/experimenten uit fase 1. Bij deze opwarmsnelheid zal de thermische wegloopreactie vanuit het midden plaatsvinden. Deze simulaties zijn wederom vergeleken met de experimentwaarden. Als laatste zijn simulaties uitgevoerd met een slow Cook-off model en vergeleken met de experimentele waarden. De gebruikte gegevens van zijn afkomstig van de ‘feasibility study of an IM ignitor’ [3]. Het betreft hier nulde orde en niet-nulde orde reactiekinetiekparameters.

5.2 Karakteriseringsexperimenten versus berekeningen

Het doel van de karakteriseringsexperimenten was de TNO-PML Cook-off buis thermisch te karakteriseren, hetgeen inhoudt dat onder meer de randvoorwaarden en de warmteoverdrachtscoëfficiënten bepaald worden. Hiervoor zijn op verschillende overgangen van het ene naar het andere materiaal thermokoppels geplaatst en is een bepaald temperatuurtraject gevolgd. Met hetzelfde traject zijn eveneens simulaties uitgevoerd en zijn de verschillende warmteoverdrachtscoëfficiënten gevarieerd. Uit de vergelijking van de resultaten van deze metingen met de simulaties is een schatting voor de verschillende warmteoverdrachtscoëfficiënten gemaakt.



Figuur 4: Ingekorte schematische tekeningen van de TNO-PML Cook-off buis met locatie van de thermokoppels en overdrachtsgebieden (dikke lijnen) in de karakteriseringsmetingen/-berekeningen.

In figuur 4 is een schematische tekening van de TNO-PML Cook-off buis gegeven met de locaties van de thermokoppels. Eveneens zijn in deze figuur de namen van de bepaalde warmteoverdrachtscoëfficiënten via een dikke lijn aangegeven. *Gapleng* is de overdracht tussen de teststof en de stalen buis, *gapschr* tussen de schroefdraad van de dop en de buis, *gapcop* is de warmteoverdracht tussen de dop en de buis via de koperen cilinder en *gapsple* de overdracht tussen de dop en de teststof. Daarnaast zijn er nog warmteoverdrachtscoëfficiënten aan de lucht via de cilindrische kant van de dop (*dopcyl*) en de vlakke kant van de dop (*dopvlak*). In figuur C.1 in bijlage C is een resultaat van een karakteriseringsmeting gegeven. De nummers van de thermokoppel komen hierbij overeen met de nummer in de tekening. In figuur C.2 in bijlage C is een simulatie van dit experiment gegeven nadat de warmteoverdrachtscoëfficiënten bepaald zijn. De volgende waarden zijn gevonden (tabel 2).

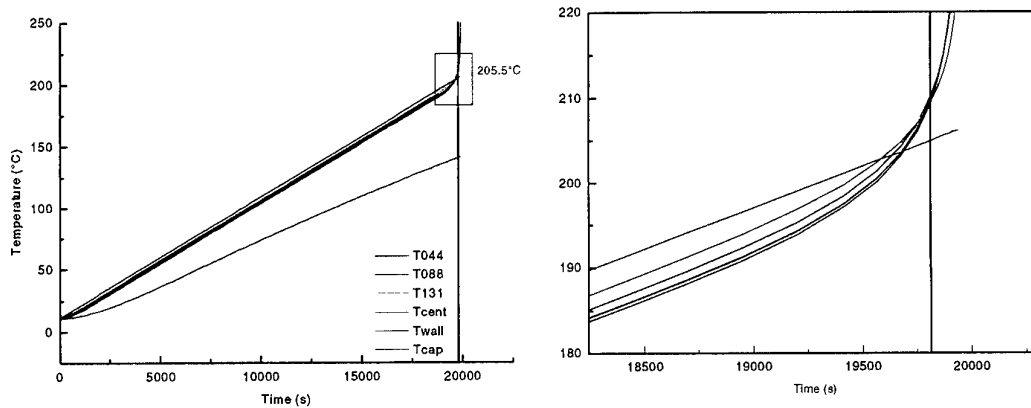
Tabel 2: Warmteoverdrachtscoëfficiënten van de TNO-PML Cook-off buis.

(J/s-m ² -K)	Niet-geïsoleerd	Geïsoleerd (6 cm)
Gapleng	350	350
Gapschr	1000	1000
Gapcop	1200	1200
Gapsple*	350, 6,0	350, 6,0
dopcyl	5,0, 6,0 (afhank. van T)	0,5
dopvlak	6,0, 7,7 (afhank. van T)	0,5

* Indien er direct contact met de dop is geldt de hoge waarde, is er een luchtspleet tussen de teststof en de dop dan geldt de lage waarde.

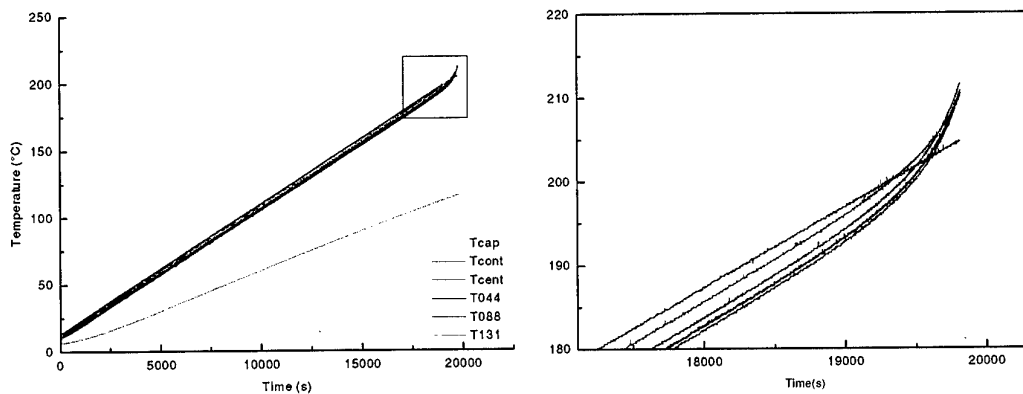
5.3 HMX-PBX berekeningen versus experiment

Van de gegevens uit enerzijds de karakteriseringsexperimenten/-berekeningen en anderzijds uit de berekeningen van fase 1, is gebruikgemaakt bij de berekening van de simulaties met HMX-PBX met een opwarmsnelheid van 0,01 °C/s. Deze berekeningen zijn wederom vergeleken met de experimentele waarden.



Figuur 5: Resultaat van een HMX-PBX simulatie met een opwarmingsnelheid van $0,01\text{ }^{\circ}\text{C/s}$.

In figuur 5 is het resultaat van een HMX-PBX simulatie gegeven met daarnaast de uitvergroting van de laatste fase. De verticale donkere lijn geeft hierbij het moment aan waarbij de breekdruk van de Cook-off buis overschreden wordt en daarmee het einde van de simulatie. In figuur 6 is een experimenteel resultaat met dezelfde opwarmingsnelheid gegeven. Tevens is ook van dit experiment een vergroting van de eindfase van het experiment gegeven. Een vergelijking van de vier grafieken laat duidelijk zien dat de berekeningen goed overeenkomen met het experiment tot en met de eindfase toe. Naast de temperatuurverschillen in de buis is een wegloopreactie ten gevolge van de ontleding van de explosieve stof in beide figuren waar te nemen.



Figuur 6: Het resultaat van een experiment met HMX-PBX in de TNO-PML Cook-off buis met een opwarmingsnelheid van $0,01\text{ }^{\circ}\text{C/s}$.

5.4 Slow Cook-off berekeningen versus het experiment

In de laatste fase zijn met de gegevens van de 'Feasibility study of an IM-Ignitor', berekeningen uitgevoerd met een slow Cook-off model zoals beschreven hoofdstuk 3. In de evaluatie van het 'feasibility-project' [3] zijn de gegevens samengevat.

In tabellen 3, 4, 5 en 6 is een overzicht gegeven van de reactiekinetiekparameters die van belang zijn voor de berekeningen. De waarden zijn afkomstig van thermogravimetrieanalyses (TGA) en DSC-metingen.

Tabel 3: Resultaten van de kinetiekberekeningen voor een AP/HTPB-stuwstof.

Snelheid	Orde	-E/r	Ea (kJ/mol)	ln (A)	A (min. ⁻¹)
1 °C/min.	1	-6,75975	56,20	10,541	3,78E4
	2	-8,60023	71,21	14,665	2,34E6
	0,5	-5,83951	48,55	8,4792	4,81E3

Tabel 4: Resultaten voor de reactiekinetiek voor een AP/HTPB-stuwstof (nulde orde).

Conversie 2%	Ea=187,42 kJ/mol	Qo=5,4515E19 J/kg·s
Conversie 4%	Ea=232,04 kJ/mol	Qo=4,2952E23 J/kg·s
Conversie 8%	Ea=118,22 kJ/mol	Qo=1,1543E11 J/kg·s

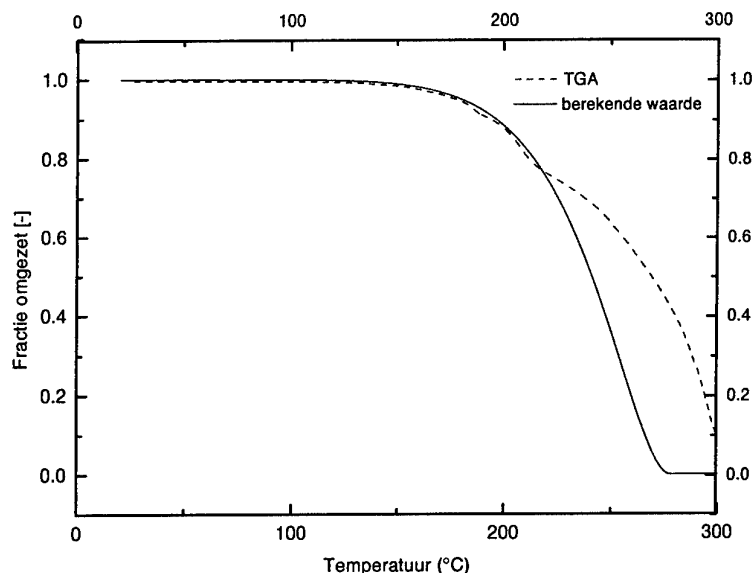
Tabel 5: Resultaten van de kinetiekberekeningen voor een PPG/AP/AN-stuwstof.

Snelheid	Orde	-E/r	Ea (kJ/mol)	ln (A)	A (min. ⁻¹)
1 °C/min.	1	-6,81471	56,66	8,757	6,36E3
	2	-8,29090	68,93	12,210	2,01E5
	0,5	-6,07666	50,52	7,0312	1,13E3

Tabel 6: Resultaten voor de reactiekinetiek voor een PPG/AP/AN-stuwstof (nulde orde).

Conversie 1%	Ea=107,64 kJ/mol	Qo=5,51 E11 J/kg·s
Conversie 2%	Ea=130,42 kJ/mol	Qo=8,45 E13 J/kg·s
Conversie 4%	Ea=180,50 kJ/mol	Qo=1,47 E19 J/kg·s

Omdat de frequentiefactoren (ln(A)) voor beide stuwstoffen vrij laag waren is gekeken of de berekening van de parameters ook overeenkwamen met de gemeten TGA-waarden. In figuur 7 is het resultaat van een ontledingsberekening voor een PPG/AP/AN-stuwstof gegeven samen met de origineel gemeten TGA-waarden. Tot een omzetting van 20% ($1-\alpha=0,8$ in de grafiek) komt de gemeten waarde goed overeen met de berekende waarde. Omdat bij omzettingen van minder dan 5% explosieve stof een 'runaway'-reactie al op volle gang is, zou dit gebied voldoende moeten zijn voor een simulatie van een wegloopreactie in een Cook-off berekening.



Figuur 7: Omzetting van een AP/AN/PPG stuwstof in een TGA met een opwarmsnelheid van 1 °C/min. samen met de berekende curve voor de Cook-off simulatie.

In tabel 7 is een overzicht gegeven van de experimentele en berekende waarde van de Cook-off experimenten met stuwstoffen. Zoals uit de tabel blijkt, zijn er geen waarden voor de berekeningen met niet-nulde orde reacties. In de berekeningen start de decompositie van de stuwstof al rond de 150 °C en heeft een volledige omzetting van de stof al bij temperaturen rond de 240 °C plaatsgevonden. Eveneens was de waarde voor de totale energie-inhoud klaarblijkelijk zo laag dat geen 'runaway' in de berekening geconstateerd werd.

De nulde orde kinetiek doet het daarentegen beter wat betreft de AP/HTPB-stuwstof. Bij een omzetgraad van 2% is de wandtemperatuur op het moment van de thermische weglööpreactie $T_{wand}=267$ °C, en is de afwijking ten opzichte van het experiment (272 °C) 5 °C. Bij een omzetting van 4% is de afwijking 5 °C naar boven en is de berekende explosietemperatuur 277 °C. Voor de AP/AN/PPG stuwstof komen de waarden niet overeen met de experimentele waarden.

Tabel 7: Overzicht van de resultaten van de slow Cook-off simulatie en experimenten.

Stuwstof	Texpl experimenteel	Texpl Simulatie nulde orde	Texpl Simulatie A->B orde n=0,5
AP/HTPB	272	267 (2%) 277 (4%)	geen geen
AP/AN/PPG	179	267 (2%) 265 (4%)	geen geen

6 Discussie

Thermische berekeningen met HMX-PBX

Indien de zuivere thermische simulatieresultaten van HMX-PBX met de experimentele resultaten vergeleken worden, kan gesteld worden dat de licht-aangepaste Tarver McGuire-kinetiek met een driestaps reactiekinetiekmodel goed voldoet. Bij de opwarmsnelheid van 0,05 °C/s en van 0,01 °C/s zijn de verschillen voor de explosietemperatuur, de wandtemperatuur op moment van de 'explosie', in vergelijking tot de experimenten, niet groter dan enkele graden. Uit de vergelijking van de temperatuurgradiënten van beide experimenten met de resultaten van de simulaties kan ook gesteld worden dat de berekeningen goed met de praktijk overeenkomen.

Duidelijk is echter dan bij het experiment met een opwarmsnelheid van 0,05 °C nog geen duidelijke weglööpreactie te zien is, maar slechts een lichte afwijking van de lineaire opwarmsnelheid. Tevens kan uit de fragmentatie van de buis afgeleid worden dat er slechts sprake is van het openbreken van de buis ten gevolge van een verhoogde druk. In enkele experimenten met PBX-en zijn zelfs na het experiment nog grote delen niet gereageerde explosieve stof teruggevonden. Bij het langdurige experiment met een opwarmsnelheid van 0,01 °C/s is er wel sprake van het begin van een weglööpreactie, vanuit het midden van de buis, maar is deze nog niet maximaal qua snelheid.

Het gecombineerde thermisch/chemisch/drukmodel

Door gebruik te maken van het drukmodel kan blijkbaar een betere schatting van het moment van reactie gemaakt worden. Bij het 0,05 °C/s experiment blijkt duidelijk uit de simulatie, net als in het experiment, dat de interne druk de breekdruk van de buis overschrijdt voordat de thermische weglööpreactie plaatsvindt. Ook in de simulatie van het langzame experiment wordt de breekdruk van de buis bereikt voordat de weglööpreactie maximaal is.

In hoeverre het drukmodel overeenkomt met de praktijk is moeilijk te zeggen. Uit onderzoek [11] blijkt dat het model niet direct uit de lucht komt vallen. Uit de praktijk blijkt dat er inderdaad holten gevormd worden waarin de decompositiegassen zich verzamelen waardoor de holten groeien. De gebruikte gasfasevergelijking is slechts een model van een toestand zoals deze in een prefase van de Cook-off reactie verwacht wordt. De gebruikte constante parameters zullen zeker niet voor het gehele Cook-off proces gelden. Eveneens zal de mate van poreusiteit en de verandering hiervan als functie van de ontledinggraad, en de diffusiesnelheid van het gas, een belangrijke rol spelen in berekening van de lokale en globale druk. Ondanks het groot aantal randvoorwaarden lijkt het er op dat met behulp van de drukberekeningen een beter stopcriterium is gevonden voor de numerieke simulatie van een Cook-off experiment. Voor de bevestiging zullen nog enkele zeer 'goede' drukmetingen nodig zijn.

Mede dankzij de karakteriseringstesten/-simulaties kunnen goede schattingen van de temperatuurprofielen van de TNO-PML Cook-off buis gemaakt worden met behulp van de computercode. Alle berekende temperaturen verschillen slechts enkele graden van de gemeten waarden, met inbegrip van de uiterste doptemperaturen. De belangrijkste warmteoverdrachtscoëfficiënten zijn bekend en zullen bruikbaar zijn in toekomstige berekeningen met de TNO-PML Cook-off buis.

De berekeningen van temperatuurprofielen van het raketsysteem

De raketsysteemtemperatuurprofielberekeningen geven een goede indruk van de temperatuurgradiënten die verwacht kunnen worden bij dergelijke systemen. Het blijkt dat bij een intermediaire opwarmingsnelheid van 3 °C/min. enorme temperatuurverschillen gevonden worden tussen het interne van de raket en de buitenwand. Tevens blijkt dat bepaalde doorgangen een enorme invloed hebben op de warmte-doorstroom in de richting van de ontsteker. Er werden temperatuurverschillen gevonden van 250 tot 150 °C.

Ook bij een opwarmingsnelheid van 3,3 °C/uur (slow Cook-off) zijn nog temperatuurverschillen tot 12 °C gevonden. Hierbij hebben de doorgangen wel invloed op de maximale verschillen, maar zijn de verschillen beduidend minder. De verschillen bedroegen 4 tot 12 °C. In deze analyses is opwarming van de stuwstoffen niet meegenomen.

Om de analyse meerwaarde te geven is gekeken hoe de stoffen reageren in de slow Cook-off, SCB en TNO-PML Cook-off testen [3]. In een niet opgesloten toestand reageert de HTPB/AP-stuwstof bij ongeveer 272 °C terwijl de PPG/AP/AN-stuwstof bij 179 °C een reactie geeft. In opgesloten toestand, zonder vrije ruimte in het testitem, ontlopen ze elkaar niet veel. Bij een opwarmingsnelheid van 0,05 °C/s geeft de HTPB/AP-stuwstof bij 200 °C een reactie terwijl de PPG/AP/AN-stuwstof bij 190 °C een reactie geeft. De volgende denkbare cases kunnen zich nu voordoen.

Case 1

Indien de raketmotor als een gesloten systeem beschouwd wordt, terwijl de ontsteker zijn gassen kwijt kan in de centrale boring van de raketmotor, kan volgens de experimentele gegevens het volgende van toepassing zijn.

- a Indien alle stuwstof van HTPB/AP gemaakt is zal de hoofdlading vroeger dan de ontsteker ontbranden en kan ten gevolge van de slechte mechanische eigenschappen bij deze hoge temperatuur een zeer heftige reactie ontstaan.
- b Indien de hoofdlading van HTPB/AP en de ontsteker van PPG/AP/AN gemaakt zijn, zal de hoofdlading bij een lagere temperatuur dan 200 °C ontsteken (bij lage opwarmingsnelheid van 3,3 °C/uur zal in opgesloten toestand de wegloopreactie altijd lager zijn dan bij een opwarmingsnelheid van 3 °C/min.) terwijl de PPG stuwstof bij 179 °C ontsteekt. Indien de ontsteker eerder en op een normale manier brandt dan de hoofdlading, bepaalt het brandgedrag van de

hoofdlading bij deze temperatuur of de verbranding overgaat in een heftige reactie. Indien de hoofdlading eerder ontbrandt dan de ontsteker zal er geen verschil zijn met case 1a.

Case 2

Indien de raketmotor ook als open systeem beschouwd wordt zal het volgende gelden.

- a Indien alle stuwstof van HTPB/AP gemaakt is zal de raket vanuit het midden van de hoofdlading tot ontbranding komen. Net als in case 1a zal dit hoogstwaarschijnlijk tot een heftige reactie leiden ten gevolge van de verslechterde mechanische eigenschappen.
- b Indien de ontsteker van PPG-stuwstof gemaakt is zal deze hoogstwaarschijnlijk eerder ontsteken dan de HTPB-stuwstof daar de ontbrandingstemperaturen van de beide stuwstoffen in een open slow Cook-off test sterk uit elkaar liggen. Hierdoor zal, indien de ontsteker normaal functioneert en de HTPB-stuwstof nog een normaal brandgedrag vertoont, de raketmotor redelijk normaal kunnen functioneren.

Case 3

Indien beide systemen als gesloten beschouwd worden kan het volgende gelden.

- a Indien alle stuwstof van HTPB/AP gemaakt is zal net zoals in case 1a de raketmotor hoogstwaarschijnlijk heftig reageren.
- b Indien de ontsteker van PPG-stuwstof gemaakt is zullen beide elkaar niet veel ontlopen qua ontbrandingstemperatuur. Door de grote bulk stuwstof in de hoofdlading is het waarschijnlijk dat de gegenereerde warmte hier niet kan wegebben waardoor de ontsteking in het midden van de hoofdlading zal beginnen voordat de ontsteker ontbrandt. Hierdoor zal weer een reactie optreden zoals in case 1a.

Door het feit dat niet goed bepaald kan worden of in een raketmotor een breekmembraan en de boring voor een gesloten dan wel open systeem zorgen, terwijl de reacties van de beide stuwstoffen in een open en gesloten systeem volledig verschillend reageren kan geen eenduidig antwoord gegeven worden hoe aan de hand van de temperatuurprofielen de raketmotor bij langzame opwarming zal reageren.

Slow Cook-off berekeningen

Voor de slow Cook-off berekeningen komen de berekende reactiesnelheidsvergelijkingen niet overeen met de experimentele waarden. Wellicht is, door beperkte hoeveelheid tijd die hieraan besteed kon worden, niet genoeg onderzoek verricht naar het bepalende reactiemechanisme en overall bepalende reactiestap bij de ontleding van de stuwstoffen. Bij de ontleding van complexe composities zoals een HTPB/AP [12, 13, 14] met toevoegingen die de verbranding moeten regelen, zijn zoveel concurrerende reactiestappen dat een diepgaander onderzoek nodig is om de belangrijke stappen te bepalen en te kwantificeren. Tevens is het belangrijk om te weten of de kinetische parameters met een open dan wel gesloten systeem

bepaald zijn. Bij de ontleding van vele energetische materialen, zoals AP, komen gassen vrij die een katalytische werking kunnen hebben op de reactiesnelheid. Indien deze in een open systeem kunnen vluchten zal dit wel degelijk invloed hebben op de bepaalde kinetiek die van toepassing moet zijn voor een gesloten systeem.

Een andere reden voor de niet-correcte bepaling van de kinetiekparameters is de volgende. Bij vele energetische materialen bestaat de ontleding van het materiaal uit een aantal al dan niet parallelle reactiestappen, waarbij de eerste stap een endotherme stap is, waarbij de grote ketens in kleine deelproducten opgesplitst worden. Deze stap wordt veelal gevolgd door licht-exotherme stappen met als laatste een of meer sterk-exotherme stappen die verantwoordelijk zijn voor de grote hoeveelheden warmte die vrijkomen. Bij een TGA echter wordt niet naar de energietoename of -afname gekeken maar naar de afname van de massafractie als functie van de temperatuur. Aan de hand van deze afname, in de eerste fase van de ontleding, is de bepaling van de kinetiek uitgevoerd. Klaarblijkelijk is dit niet de belangrijkste fase, waarbij de grote hoeveelheden warmte vrijkomen, voor de ontleding van deze stuwstoffen. Dus, ondanks dat de massafractieafname goed gemodelleerd wordt in de beginfase van de ontleding, hoeft dit niet te betekenen dat dit een goede modellering is voor de ontleding van de stuwstoffen.

7 Conclusies

Er is een aantal computermodellen ontwikkeld waarmee ofwel eenvoudige thermisch-chemische berekeningen ofwel meer complexe gecombineerde thermisch-chemische drukkerekeningen uitgevoerd kunnen worden. Naast gegevens uit de literatuur, zijn thermische- en reactiesnelheidsparameters bepaald, die nodig zijn voor deze modellen. Met de ontwikkelde computerprogramma's zijn vervolgens TNO-PML Cook-off buis, raketsysteem en slow Cook-off berekeningen uitgevoerd en vergeleken met de experimentele waarden.

Met de resultaten van de temperatuurprofielberekeningen van het raketsysteem is een beter inzicht verkregen in het warmtetransport door het systeem. Dit kan bij de ontwikkeling van nieuwe systemen een bijdrage leveren aan het ontwerp. Een betere inschatting van een mogelijke responsie van een raketsysteem op een thermische stimulus kan gemaakt worden indien naast deze berekeningen de resultaten van de verschillende Cook-off experimenten toegevoegd worden.

Het blijkt dat de reactiesnelheidsvergelijkingen die bepaald zijn voor de stuwstoffen HTPB/AP en PPG/AP/AN niet overeenkomen met de werkelijkheid. Hiervoor is een aantal redenen genoemd waaruit blijkt dat de bepaling van de reactiesnelheidsvergelijking van een energetisch materiaal complexer is dan in eerste instantie aangenomen werd.

De filosofie van het 'Feasibility-project' was indertijd een raketsysteem ongevoelig voor Cook-off te maken door een ontsteker te bouwen die ontsteekt op het moment dat de hoofdclading nog in een dusdanige toestand verkeerd dat een normale verbranding van de motor waarschijnlijk is. Omdat de reactiekinetiek van de stuwstof niet voldoende bekend was, was het niet mogelijk om gecombineerde thermisch-mechanische berekeningen uit te voeren. Uit de berekeningen had moeten blijken of op het moment van de 'runaway' van de 'ignitor', de mechanische spanningen in het systeem van dien aard zouden zijn dat een heftige reactie onwaarschijnlijk zou zijn. Indien voor een vervolg van deze filosofie gekozen zou zijn, had ook eenvoudig gebruikgemaakt kunnen worden van een ontsteekpil die ontsteekt bij lage temperatuur.

De bovenstaande filosofie wordt tegenwoordig niet meer gevolgd omdat een raketsysteem dat bij 130 °C ontsteekt niet gewenst is op een schip of in een of andere opslagplaats voor munitie- en raketsystemen. Systemen die momenteel gebruikt worden om de responsie van een Cook-off reactie te temperen zijn onder andere het gebruik van ventgaten en andere technieken [15, 16, 17, 20, 21, 22]; composietmaterialen [18, 19] die bij voorhoogde temperatuur de opsluiting verminderen en tenslotte het gebruik van minder-gevoelige explosieve stoffen en stuwstoffen [23, 24, 25].

Met het gebruik van de computermodellen met gegevens uit de literatuur, de Tarver-McGuire-reactiekinetiek en gecombineerde drukberekeningen zijn goede resultaten bereikt. Ook uit eerdere berekeningen is gebleken dat aan de hand van dit model met nulde-orde kinetiek al goede resultaten behaald konden worden [26]. De temperatuurprofielberekeningen geven een goede indruk van de temperatuurgradiënten van het testitem die zeer goed overeenkomen met de experimentele waarden. Met behulp van de drukberekeningen wordt een stopcriterium voor de simulaties verkregen dat beter met de werkelijkheid overeenkomt dan zuivere temperatuurberekeningen.

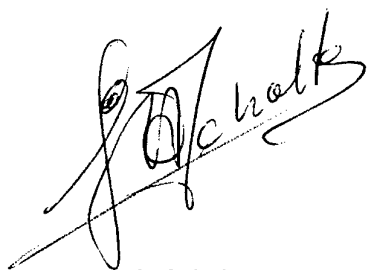
8 Referenties

- [1] Makkus, John,
'Cook-off testen in Feasibility study of in IM-ignitor' Interne rapportage, 1996.
- [2] 'ABAQUS manual', version 5.6 Hibbitt, Karlsson&Sorensen, Inc, (1996).
- [3] Scholtes, J.H.G.,
'Samenvatting van de resultaten en evaluatie van het project 'Feasibility study of an IM Ignitor' ten behoeve van het project 'Thermische Initiatie', TNO-rapport PML 1997-A39.
- [4] Scholtes, J.H.G.,
'The improvement of the TNO-PML Cook-off test',
TNO-rapport PML 1994-A56.
- [5] Scholtes, J.H.G.,
'Thermische berekeningen aan de TNO-PML Cook-off test in ABAQUS met de Tarver-McGuire reactiekinetiek',
TNO-rapport PML 1995-A37.
- [6] Hobbs, M.L.; Baer, M.R. and Gross, R.J.,
'Constitutive mechanical model for energetic materials',
Sandia national laboratories Albuquerque, New Mexico.
- [7] Cowperthwaite, M. and Zwisler, W.H.,
'TIGER computer Program Documentation', Stanford Research Institute, Menlo Park, California 1973.
- [8] Hobbs, M.L. and Bear, M.R.,
'Calibrating the BKW-EOS with a large product species Data Base and Measured C-J properties', Tenth Symposium (international) on Detonation, Boston Massachusetts, July 1993.
- [9] McGuire, R.R. and Tarver, C. M.,
'Chemical Decomposition Models for the Thermal Explosion of Confined HMX, TATB, RDX and TNT Explosives', 7th symp. of detonation 1981.
- [10] Scholtes, J.H.G.,
'TNO-PML Cook-off experiments with HMX-PBX and Comp B',
TNO-rapport PML 1997-A60 (concept).

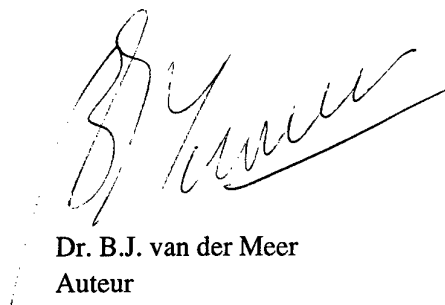
- [11] Hobbs, M.L.; Baer, M.R. and Gross, R. J.,
'Thermal, chemical, and Mechanical Cook-off Modeling', JANNAF
Propulsion Systems Hazards Subcommittee Meeting, San Diego, California, 1994.
- [12] Guirao, C. and Williams, F.A.,
'A Model for Ammonium Perchlorate Deflagration between 20 and
100 atm.', AIAA Journal Vol. 9, No. 7, July 1971.
- [13] Ho, S.Y. and Fong, C.W.,
'Relationship Between Impact Ignition Sensitivity and Kinetics of the
Thermal Decomposition of solid Propellants, Combustion and Flame 75:
139-151, 1989.
- [14] Brill, T.B.; Brush, P.J. and Patil, D.G.,
'Thermal decomposition of energetic materials 60. Major Reaction Stages
of a simulated Burnign surface of NH_4ClO_4 '.
- [15] Williamson, Bruce,
'US Army IM Overview', Insensitive Munitions Technology Symposium,
San Diego, California, March 1996.
- [16] Pascal, Sylviane; Grave, Alain; Berthet, Didier and Miermont, Henri,
'Thermally initiated venting system of a rocket motor subject to a fuel
fire', Insensitive Munitions Technology Symposium, San Diego, California,
March 1996.
- [17] Yarom, T.; Aboody, E. and Katz, Y.,
'Safety Mechanism for penetrating warheads in a gradually increasing
environmental temperature', Insensitive Munitions Technology Symposium,
San Diego, California, March 1996.
- [18] Wilson, L.T. and Simpson, Benny et. al.,
'Minimizing Cook-off reaction using composite materials in warhead
designs', Insensitive Munitions Technology Symposium, San Diego,
California, March 1996.
- [19] Lobdell, S.K.; Wilson, L.T.; Simpson, B. and Moore, S.,
'Design Analysis of an IM compliant composite warhead for surface target
applications', Insensitive Munitions Technology Symposium, San Diego,
California, March 1996.
- [20] Brown, C.J.; Francey, D.M.; Maxey, I.H.; Turner, D. and Whitehouse, A.,
'Insensitive munitions aspects of rocket motor and warhead', Insensitive
Munitions Technology Symposium, San Diego, California, March 1996.

- [21] Grave, A. and Garnero, P.,
'Intumescent coating benefit for rocket motor thermal protection under a fuel fire stimuli', Insensitive Munitions Technology Symposium, San Diego, California, March 1996.
- [22] DeMay, S.C.; Kong, J.A.; Chun, P.A. and Thelen, C.J.,
'Insensitive munitions hazards tests of a pulsed rocket motor', Insensitive Munitions Technology Symposium, San Diego, California, March 1996.
- [23] Langlotz, W.,
'Examination of new propellants for usability as 76 mm LOVA propellant charge', Insensitive Munitions Technology Symposium, San Diego, California, March 1996.
- [24] Lamy, P.; Leiber, C.O.; Cumming, A. and Zimmer, M. et. al.,
'Air Senior National Representative long term technology project on insensitive high explosives', Insensitive Munitions Technology Symposium, San Diego, California, March 1996.
- [25] Comfort, T.F.; Dillman, L.G.; Hartman, K.O.; Mangum, M.G. and Steckman, R.M.,
'Insensitive HTPE propellants', Insensitive Munitions Technology Symposium, San Diego, California, March 1996.
- [26] Scholtes, J.H.G.,
'Cook-off experimenten met de TNO-PML SCB bij verschillende opwarmingsnelheden', TNO-rapport PML 1995-A15.

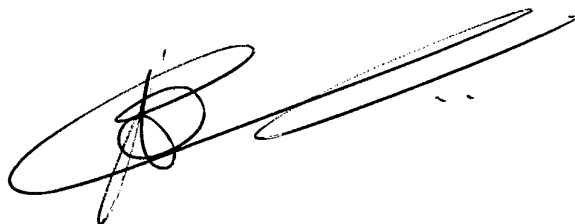
9 Ondertekening

A handwritten signature in black ink, appearing to read 'J.H.G. Scholtes', written in a cursive style.

Ir. J.H.G. Scholtes
Projectleider/Auteur

A handwritten signature in black ink, appearing to read 'B.J. van der Meer', written in a cursive style.

Dr. B.J. van der Meer
Auteur

A handwritten signature in black ink, appearing to read 'A.C. van der Steen', written in a cursive style.

Dr. A.C. van der Steen
Groepshoofd

```

*****
**          TNO-PML Cook-off buis
**          J.H.G. Scholtes apr 1997
**          2-dim model HMX-PBX
**          aanpassing:integratievolume via ABAQUS
**          aanpassing cellen voor overdracht tussen materialen
**          verschillende soorten overdrachten bij overgangen
**          cp als functie van de temperatuur en Q1=0.0418E6(factor 10
kleiner dan TM)
*****
*HEADING
J.H.G. SCHOLTES 'Cook-off'buis (cook5):Tomg=11.0,Ti=11.0,run hmx261
**
**ABAQUS inputfile filenaam co56b2.inp
**
*****
** Temperaturen in graden Celsius
** Tijden in seconden
** Stofgegevens HMX-PBX HU 28-x:
**
** Stofnaam          : HMXPBX
** Tarver and McGuire kinetiek
** A->B->2C->D
** decomp energie Q1 : -0.0418E6 J/kg
**                  Q2 : +1.254E6 J/kg
**                  Q2 : +5.016E6 J/kg
** Aktiv. Energie Ea1: 26500*R J/mol
**                  Ea2: 22200*R J/mol
**                  Ea3: 17200*R J/mol
** preexp factor   Z1 : 1.412997E21 1/s      ln(48.7)
**                  Z2 : 1.932160E16 1/s      ln(37.5)
**                  Z3 : 1.598361E12 1/s^2    ln(28.1)
*****
** dichtheid rho    : 1640/1616 kg/m3
** soort. warmte Cp* : 957.4+2.28182*T
** soort geleid lamb : 0.317 J/smK (T factor in Cp)
** stralingscoef    : 0.0
** epsilon*c         : 4/54E-8 J/sm2K4
** warmteoverdcoef   : 0.5 J/sm2K (isolation)
** explosive substance 0.87
*****
*****
*PREPRINT,HISTORY=NO,MODEL=NO
**
*****
**          NODES GENEREREN
**
**NODE
100,0.0,0.0
114,0.0170,0.0
116,0.0175,0.0
125,0.0280,0.0
142,0.05,0.0
900,0.0,0.02
914,0.0170,0.02
916,0.0175,0.02
925,0.0280,0.02
942,0.05,0.02

```

1000,0.0,0.0205
1014,0.0170,0.0205
1016,0.0175,0.0205
1024,0.0275,0.0205
1924,0.0275,0.06167
1925,0.0280,0.06167
1942,0.0500,0.06167
7000,0.0,0.27
7014,0.0170,0.27
7016,0.0175,0.27
7024,0.0275,0.27
*NGEN,NSET=DOPLIOND
100,114,2
*NGEN,NSET=DOPREOND
116,142,2
*NGEN,NSET=DOPLIMID
900,914,2
*NGEN,NSET=DOPREMID
916,942,2
*NGEN,NSET=GAPLI
1000,1014,2
*NGEN,NSET=GAPRE
1016,1024,2
*NGEN,NSET=DOPREBOV
1924,1942,2
*NGEN,NSET=BULIBOV
7000,7014,2
*NGEN,NSET=BUREBOV
7016,7024,2
*NSET,NSET=DOPRRTUS
925,926,928,930,932,934,936,938,940,942
*NSET,NSET=DOPRRBOV
1925,1926,1928,1930,1932,1934,1936,1938,1940,1942
*NFILL,NSET=BUISSES
GAPLI,BULIBOV,30,200
*NFILL,NSET=BUISST
GAPRE,BUREBOV,30,200
*NFILL,NSET=DOPLI
DOPLIOND,DOPLIMID,4,200
*NFILL,NSET=DOPHOEK
DOPREOND,DOPREMID,4,200
*NFILL,NSET=DOPDRAAD
DOPRRTUS,DOPRRBOV,5,200
*NSET,NSET=NALL
BUISSES,DOPLI,DOPHOEK,DOPDRAAD,BUISST
*NSET,NSET=HEATER,GENERATE
3624,7024,200
*NSET,NSET=NBUIISM,GENERATE
7000,7024,2
*NSET,NSET=NBUIIS5,GENERATE
6000,6024,2
*NSET,NSET=NBUIIS4,GENERATE
5000,5024,2
*NSET,NSET=NBUIIS3,GENERATE
4000,4024,2
*NSET,NSET=NBUIIS2,GENERATE
3000,3024,2
*NSET,NSET=NBUIIS1,GENERATE
2000,2024,2
*NSET,NSET=NBUIIS0,GENERATE
900,942,2

```
*NSET,NSET=NBUI500,GENERATE
100,142,2
*NSET,NSET=NPUNT
NBUI5M,NBUI55,NBUI54,NBUI53,NBUI52,NBUI51,NBUI50,NBUI500
*****
**                ELEMENTEN GENEREREN
*****
*ELEMENT,TYPE=DCAX4
101,100,102,302,300
1001,1000,1002,1202,1200
1017,1016,1018,1218,1216
926,925,926,1126,1125
927,926,928,1128,1126
*ELGEN,ELSET=EDOND
101,21,2,2,4,200,200
*ELGEN,ELSET=EES
1001,7,2,2,30,200,200
*ELGEN,ELSET=EBUI5
1017,4,2,2,30,200,200
*ELGEN,ELSET=EDSCHR
926,1,1,1,5,200,200
*ELGEN,ELSET=EDREB
927,8,2,2,5,200,200
*ELEMENT,TYPE=DINTER2A
923,922,925,1022,1024
1025,1024,1224,925,1125
901,900,902,1000,1002
1015,1014,1214,1016,1216
*ELGEN,ELSET=GAPESS1
901,11,2,2
*ELGEN,ELSET=GAPSCHR
1025,1,2,2,5,200,200
*ELGEN,ELSET=GAPLENG
1015,1,2,2,30,200,200
*ELSET,ELSET=GAPESS1
GAPESS1,923
*ELSET,ELSET=GAP
GAPSCHR,GAPLENG,GAPESS1
*ELSET,ELSET=GAPCOP
921
*ELSET,ELSET=GAPSPL
901,903,905,907,909,911,913,915,917,919,923
*****
*ELSET,ELSET=EDOP
EDOND,EDSCHR,EDREB
*ELSET,ELSET=ESTAAL
EDOP,EBUI5
*ELSET,ELSET=EBUI5M,GENERATE
6801,6823,2
*ELSET,ELSET=EDRAO,GENERATE
101,141,2
*ELSET,ELSET=EDRAR,GENERATE
141,1741,200
*ELSET,ELSET=EDBUI5
1726,1727,1729,1731,1733,1735,1737,1739,1741
*ELSET,ELSET=HEAT,GENERATE
2223,6823,200
*ELSET,ELSET=EALL
ESTAAL,EES,GAP
*****
**                MODEL
*PLOT,PLOT SIZE=1.0,OUTPUT=ASCII,COLORS=4
COOK-OFF BUI5 2-D MODEL TM-kinetics
18.,10.,13.,2.5,3.0,2.0,3.0,1.0
```

```

*COLOR SET,COLOR=1,ELSET=ESTAAAL
*COLOR SET,COLOR=2,ELSET=EES
*COLOR SET,COLOR=4,ELSET=GAP
** *SHRINK,FACTOR=0.1
*VIEWPOINT,DEFINITION=MODEL AXIS ROTATION
0.0,0.0,90.0
** *DETAIL,ELSET=CEL
*DRAW
*****
** *DETAIL,ELSET=VLAK
** *DRAW,ELNUM
** *SHRINK,FACTOR=0.0
** *VIEWPOINT
** -0.2,-0.5,1.0, 0.,1.,0.
** *DRAW
**
*****
**MATERIAAL BESCHRIJVING
*MATERIAL,NAME=HMXPBX
*CONDUCTIVITY,dependencies=4
0.31,0.,0.,0.,0.
0.31,1000.,1000.,1000.,1000.
*DENSITY
1640.0
*****      Solution dependant state variables
**** 1: Massfraction(A) is Y(1) in subroutine HETVAL
**** 2: Massfraction(B) is Y(2) in subroutine HETVAL
**** 3: Massfraction(C) is Y(3) in subroutine HETVAL
**** 4: Massfraction(D) is Y(4) in subroutine HETVAL
**** 5: Massfraction(A+B+C+D) is tot in subroutine HETVAL
**** 6: Pressure in integration area
*DEPVAR
6
*HEAT GENERATION
*SPECIFIC HEAT
957.4,0.0
1185.0,100.0
1414.0,200.0
*****
*MATERIAL,NAME=STAAL
*CONDUCTIVITY
50.0
*DENSITY
7800
*SPECIFIC HEAT
460.0
**
**
*SOLID SECTION,ELSET=EES,MATERIAL=HMXPBX
1.0
**
*SOLID SECTION,ELSET=ESTAAAL,MATERIAL=STAAL
1.0
*INTERFACE,ELSET=GAPLENG
*GAP CONDUCTANCE
3.65E+02,0.0005
*INTERFACE,ELSET=GAPSCHR
*GAP CONDUCTANCE
1000.0
*INTERFACE,ELSET=GAPCOP
*GAP CONDUCTANCE
1.2E+03
*INTERFACE,ELSET=GAPSPL
*GAP CONDUCTANCE

```



```

6.0
***
*****
**          KINETISCHE VERGELIJKINGEN
*USER SUBROUTINE
      INCLUDE '/local/usr1/scholtes/druk/tmco56b2.f'
*****
**          INITIËLE CONDITIES
*INITIAL CONDITIONS,TYPE=FIELD,VARIABLE=1
NALL,0.
*INITIAL CONDITIONS,TYPE=TEMPERATURE
NALL,11.0
*INITIAL CONDITIONS,TYPE=SOLUTION
EES,1.0,0.0,0.0,0.0,1.0
*AMPLITUDE,NAME=LINEAR,DEFINITION=TABULAR,TIME=TOTAL TIME,VALUE=ABSOLUTE
0.0,11.0,25000.0,255.75
***** = T=11.0+0.00979*t
*RESTART,WRITE,FREQUENCY=5
**
***** STEP gedeelte
** begin voor integratie volume *****
** nieuw ivm. het integratie volume
** een zeroe step doet niets, Dit is nodig omdat IVOL via getvrn
** na increment #1 doorgegeven wordt
**
*step
*heat transfer, steady state
*boundary,AMPLITUDE=LINEAR
HEATER,11,,0.0
*end step
***** einde voor int volume*****
** INC=number of increments;
**
*STEP,INC=250
** DELTMX=maximum temperature change in time-step
** Next line: Initial step-size and Time-limit:
*HEAT TRANSFER,DELTMX=4.0,END=PERIOD
1.0,25000.0,,
**      time-limit is 25000 SECONDE **
*****
*BOUNDARY,AMPLITUDE=LINEAR
HEATER,11,,0.0
**
** Ambient temperature and Heat Transfer Coefficient en straling :
*FILM
EDRAO,F1,11.0,0.5
EDRAR,F2,11.0,0.5
EDBUT,F3,11.0,0.5
*RADIATE,ZERO=-273.16
EDRAO,R1,11.0,4.54E-18
EDRAR,R2,11.0,4.54E-18
EDBUT,R3,11.0,4.54E-18
*****
** invoeren loads om bij materiaal berek ufield aan te roepen
*****
*field,user,variable=1
NALL
*field,user,variable=2
NALL
*field,user,variable=3
NALL
*field,user,variable=4
NALL
*****

```

```
*PRINT,FREQUENCY=1
*NODE PRINT,NSET=NALL,FREQUENCY=3
NT
*NODE FILE,NSET=NALL,FREQUENCY=1
NT
** *EL PRINT
** IVOL
***PLOT,PLOT SIZE=1.0,FREQUENCY=20,OUTPUT=ASCII
**TEMPERATUUR CONTOURPLOT
**30.0,10.0,26.0,5.0,3.0,3.0,3.0,1.0
***VIEWPOINT,DEFINITION=MODEL AXIS ROTATION
**0.0,0.0,90.0
***PLOT MODE,ELEMENT=NO,NODE=NO,FILL=NO
***CONTOUR
**TEMP
** *EL FILE,FREQ=1,ELSET=
** TEMP
*ENDSTEP
*****
```

SUBROUTINE HETVAL:

```

C*****
C  subroutine tmco56b2.f for TARVER-McGuire kinetics for HMXPBX  *
C  subroutinte voor drukberekening voor co56b2.inp met correctie  *
C  in de REP-formule: "-" -> "+" en versie 5.6 van ABAQUS        *
C  Verdere aanpassing voor Gap conductance uitvoering          *
C*****
      SUBROUTINE HETVAL(CMNAME,TEMP,TIME,DTIME,SVAR,FLUX,PREDEF)
C      TEMP(1) is temperature after this increment
C      TEMP(2) is temperature increment
C      TIME(1) is the step time at the end of this increment
C      TIME(2) is the total time after this increment
C      DTIME is the time step dt
C      kinetics by Tarver en McGuire model
      IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
      CHARACTER*8 CMNAME
      DIMENSION TEMP(2),TIME(2),SVAR(6),FLUX(2),PREDEF(*)
      INTEGER kmax,kount,nbad,nok,ILEL,ILNO,IDONE,kincls
      REAL*8 dxsav,eps,hstart,x1,x2,y(4),xp,yp,T,tot,
      *e1,e2,e3,z1,z2,z3,rq1,rq2,rq3,RP,FTOT,RUITK(3,350)
      &,RPVT1,RPVT2,RVT1,RVT2,RPGL1,RPGL2,RVOL
      INTEGER KMAXX,NMAX
      PARAMETER (KMAXX=200,NMAX=50)
      PARAMETER(e1=26500.,e2=22200.,e3=17200.,z1=1.412997D21,
      *z2=1.93216D16,z3=1.598361D12)
      COMMON /KPATH/ kmax,kount,dxsav,xp(KMAXX),yp(NMAX,KMAXX)
      COMMON /KTEMP/ T
      common/celgi/idum1(7),iedbr,idum2(134)
      common/cmatgi/idum3(23),imtemp,idum4(66)
      common/count/kinc,idum5(58)

C      common/cedat/idum6(2),ienod
      common/cns/idum7(1),incrd,inu,idum8(1)
      common/cuvarm/keltemp,kintuv,ksptuv
      COMMON /KGPRES/ RPAB1,RPAB2,RPVT1,RPVT2,RVT1,RVT2,ILEL,ILNO
      COMMON /KUITK/RUITK,IDONE,kincls
C*****
C  *** aanpassing voor integratie volume via abaqus ***
C      common/cmats/idumx(4),xdum,jdum(59),luvarm
C  *** aanpassing voor abaqus 5.5. (59) moet (60) zijn!!
C*****
      common/cmats/idumx(4),xdum,jdum(60),luvarm
      character*8 flgray(15)
      dimension arraygs(15),jarray(15)
      ,idumx(4),jdum(60)
C  *****einde aanpassing IVOL
C
C  *****
C      jelno : current element number
C      nnod = no. of nodes on the element
C      ocoord(2) = original nodal coords
C      nnum = current node no. (user defined)
C      inno = node numbers of the element
C      kinc = current increment number
C  *****
C      character*8 cmname
      dimension coords(3)
      dimension array(10000),occoord(2),fcoord(2),disp(2)
C      dimension temp(2),svar(1),predef(*),time(2),flux(1)
      dimension nodes(27)
C
      EXTERNAL stifbs,derivs
C*****

```

```

C      startwaarden van toestandsvariabelen en startwaarden
C      voor het stelsel diffvlgv toekennnen
C      en
C      initial massfractions in: *INITIAL CONDITIONS,TYPE=SOLUTION
C*****
      eps=1D-3
      hstart=DTIME
      kmax=0
      y(1)=SVAR(1)
      y(2)=SVAR(2)
      y(3)=SVAR(3)
      y(4)=SVAR(4)
      T=TEMP(1)-0.5*TEMP(2)+273.15
      x1=TIME(1)-DTIME
      x2=TIME(1)
C      write(8,*) T,y(1),y(2),tot,x1,x2
C*****
C      aanroep van het oplossen van diff vgl van reactiekinetiek
C*****
      call odeint(y,4,x1,x2,eps,hstart,0.,nok,nbad,derivs,stifbs)
      tot=y(1)+y(2)+y(3)+y(4)
      SVAR(1)=y(1)
      SVAR(2)=y(2)
      SVAR(3)=y(3)
      SVAR(4)=y(4)
      SVAR(5)=tot
C***** berekenen van de vrijgekomen warmte in eenheidscel
      rq1=-0.0418E6*z1*dexp(-e1/T)*y(1)
      rq2=+1.254E6*z2*dexp(-e2/T)*y(2)
      rq3=+5.016E6*z3*dexp(-e3/T)*(y(3)**2)
      FLUX(1)=0.87*1640*(rq1+rq2+rq3)
      FLUX(2)=0.87*1640*(1/(T*T))*(e1*rq1+e2*rq2+e3*rq3)
C      write(8,*) FLUX(1),FLUX(2),y(1),y(2),y(3),y(4),tot,x2
C*****
C* berekeningen voor node en elementen
C*****
C
      ipoint1=-(imtemp-iedbr)
C
      call acopdj(predef(ipoint1+1),jelno)
C
      ipoint2=-(imtemp-iedbr)+ienod-1
C      nnod=predef(ipoint1+5)
      call acopdj(predef(ipoint1+5),nnod)
      do i=1,nnod
        call acopdj(predef(ipoint2+i-1),inno)
        call dbnd(0,array,inno,ircd)
        call acopdi(array(2),nnum,1)
        nodes(i)=nnum
        ocoord(1)=array(incrd)
        ocoord(2)=array(incrd+1)
C      include the following line for a 3-d model
C        ocoord(3)=array(incrd+2)
C      write(7,*)kinc,jelno,nnum,ocoord(1),ocoord(2)
      enddo
C+++
C      Here is what you'll find in PREDEF
C
C      PREDEF(1) = Current node #. Since PREDEF is a REAL*8 array you
C                  should convert it to an integer. I used the built-in
C                  function DINT for doing it and written the result to
C                  nodnum.
C
C      PREDEF(2) = X-coordinate of this node

```

```

C      PREDEF(3) = Y-coordinate      "
C      PREDEF(4) = Z-coordinate      "
C
C---
      nodnum=dint(predef(1))
C*****
C      *** verdere aanpassingen voor IVOL*****
C      *** ophalen van volume van eenheidscel
C*****
      luvarm=1
      call getvrm('IVOL',arraygs,jarray,flgray,jrcd)
      luvarm=0
      uvar=arraygs(1)
C *****einde IVOL aanpassing *****
C
C      Here some write's to check that the sub does the right things...
C      You'll find the output in the .msg file (Unit 7)
C---
c      write(7,*)'-----From HETVAL-----'
c      write(7,*)' '
c      write(7,*)'Increment#:          ',kinc
c      write(7,*)'Accumulated time:    ',time(2)
c      write(7,*)'El#:                  ',jelno
c      write(7,*)'Nodes forming El.: ',(nodes(i),i=1,nnod)
c      write(7,*)' '
c      write(7,*)' '
c      write(7,*)'Volume at INT.pnt.: ',uvar
c      write(7,*)'Actual node#:         ',nodnum
c      write(7,*)'Coordinates:          ',predef(2),predef(3),predef(4)
c      write(7,*)' '
c      write(7,*)'+++++++'
C*****
c      calculation of the pressure in node-area
C      RELEASED GASSES IN THE 2ND AND 3TH REACTIONSTEP
C**** met behulp van de gasproductiefactor de druk berekenen
C**** in deze eenheidscel
C*****
      FTOT=SVAR(3)+SVAR(4)
      CALL KPRESS(FTOT,0.,TEMP(1),RPG1,RPAB1,RPG2,RPAB2)
c      WRITE (7,*) "PRESSURE", RPG1
C*****
C *****VOORDAT ITERATIE OPNIEUW BEGINT HET PRINTEN VAN DE GLOBALE DRUK ***
C*****
C      IF ((jelno.EQ.6813).and.(nodnum.EQ.7014)) then
C.....IF (kinc.GT.kinc1s) then
      RPGL1=RPVT1/RVT1
      RPGL2=RPVT2/RVT2
      WRITE(7,*) '*** Pgl= ',RPGL1,RPGL2
      RUITK(1,kinc)=TIME(2)
      RUITK(2,kinc)=RPGL1
      RUITK(3,kinc)=RPGL2
      IF (IDONE.EQ.1) GOTO 99
      IF (RPGL1.GT.400.0) THEN
      WRITE(7,*) 'Pgloaal druk-tijd:'
      write(7,101) (RUITK(1,IT),RUITK(2,IT),RUITK(3,IT),IT=1,kinc)
      WRITE(7,*) 'EINDE UITVOERTABEL'
      IDONE=1
      ENDIF
99      ILEL=jelno
      ILNO=nodnum
      RPVT1=0.
      RPVT2=0.
      RVT1=0.
      RVT2=0.

```

```

      ENDIF
C*****
C**** ophogen van de som voor de globale drukberekening
C*****
      RVOL=uvar
      RPVT1=RPVT1+RPG1*RVOL*RPAB1/(TEMP(1)+273.15)
      RPVT2=RPVT2+RPG1*RVOL*RPAB2/(TEMP(1)+273.15)
      RVT1=RVT1+RVOL*RPAB1/(TEMP(1)+273.15)
      RVT2=RVT2+RVOL*RPAB2/(TEMP(1)+273.15)
      kincls=kinc
C*****
100  FORMAT(X,2I6,2F9.6,4F10.2)
101  FORMAT(X,3F9.3)
C  ** indien de cel tot de centrumrij behoort uitprinten:
C*****
      IF(jelno.LT.6800) goto 200
      WRITE (7,100) jelno,kinc,SVAR(3),SVAR(4),TEMP(1),TIME(2),
&RPG1,RPG2
200  RETURN
      END
C*****
c  Niet aankomen via abaqus ***
C*****
c  UFIELD
C---
      subroutine ufield(field,kfield,nsect,kstep,kinc,time,node,
&coords,temp,dtemp)
c  include 'aba_param.inc'
      IMPLICIT REAL*8(A-H,O-Z)
      dimension field(nsect),time(2),coords(3),temp(nsect)
      dimension dtemp(nsect)
C+++
C
C  if we are processing variable=1 from the *FIELD then write the node
C  number to field(1). This will be written subsequently to PREDEF(1)
C
C--
      if (kfield .eq. 1) then
         field(1)=node*1.
      else
C+++
C  if we are processing variable=2,3 or 4 then write X, Y or Z to
C  field(1). We'll find these values in PREDEF(2), PREDEF(3) and
PREDEF(4)
C  within HETVAL
C---
         field(1)=coords(kfield-1)
      endif

      return
      end
C*****
      SUBROUTINE KPRESS(RF,REPSIL,RT,RPG1,RPAB1,RPG2,RPAB2)
C  SUBROUTINE PRESSURE ESTIMATION
c  DEZE SUBROUTINE MOET DE DRUK IN EEN CEL BEREKENEN
C  VIA DE METHODE VAN BKW. DE METHODE WORDT GEBRUIKT VOOR
C  HET COMPUTERPROGRAMMA TIGER EN DE INVOERWAARDEN KOMEN
C  HOOFDZAKELIJK UIT HET ARTIKEL:
C  "CONSTITUTIVE MECHANICAL MODEL FOR ENERGETIC MATERIALS"

```

```

C      VAN M.L. HOBBS, MELVIN R. BAER AND R.J. GROSS
C
      IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
      REAL*8 RALFA, RBETA, RKAPPA, RTHETA, RCV, RXC, RHOC01, RHOTH, RMW, RYKI,
&RR, RHOG0, RHOC, RHOG, RPAB0, RF, RLAMBA, RPSI, RN, RKT, RY, RPG0, RPG1, RPG2
&RX, RZ, RB0, RB, RA0, RA, REPSIL, RT, RDC, RFE, RATBB, RPAB1, RPAB2, RHOC2
      PARAMETER (RALFA=0.5, RBETA=0.284, RKAPPA=11.85, RTHETA=10200.,
&RDC=1.1, RCV=1.0032, RXC=0.32, RHOTH=1.64, RMW=33.3,
&RYKI=471., RR=8.3144, RHOG0=1.29D-03, RN=8.3, RKT=14100., RY=100.,
&RPG0=0.1, RHOC01=1.6166, RHOC02=1.6266)
C      INITIALISATIE VAN PARAMETERS met RHOC01
C      EFFECTIEVE OMZETGRAAD:
      RFE=RF*(1.-RXC)
      RPAB0=1.-(RHOC01/RHOTH)
      RLAMBA=(RHOC01/RHOG0)*((1./RPAB0)-1.)+1.0
      RPSI=1.+RFE*(RLAMBA-1.)
C      RATIO =RATBB=B0**3/B**3.
      RATBB=1./(1.+REPSIL)**3.
      RPAB1=RATBB*(RPAB0+RFE*(1.-RPAB0))
C      WRITE(7,*) RFE, RPAB0, RLAMBA, RPSI, RATBB, RPAB
C
C      DE HOOFDVERGELIJKINGEN OM DE DRUK TE BEREKENEN:
C
      RHOG=RHOG0*RPAB0*RPSI/(RPAB1*(1.+REPSIL))
      RX=RHOG*RKAPPA*RYKI/(RMW*(273.15+RT+RTHETA)**RALFA)
      RZ=1.+RX*DEXP(RBETA*RX)
      RPG1=RZ*RHOG*RR*(RT+273.15)/RMW
      RHOC=RHOG*((RLAMBA/RPSI)-1.)/((1./RPAB1)-1.)
      RPC=RHOC*RDC*RCV*(RT+273.15)+RKT*((RHOC/RHOC01)**RN-1.0)/RN
C      WRITE(7,*) RHOG, RX, RZ, RPG, RHOC, RPC
C*****
C berekeningen van parameters van de hoofdvgl
C*****
C      EFFECTIEVE OMZETGRAAD: (MET RHOC02)
      RFE=RF*(1.-RXC)
      RPAB0=1.-(RHOC02/RHOTH)
      RLAMBA=(RHOC02/RHOG0)*((1./RPAB0)-1.)+1.0
      RPSI=1.+RFE*(RLAMBA-1.)
C      RATIO =RATBB=B0**3/B**3.
      RATBB=1./(1.+REPSIL)**3.
      RPAB2=RATBB*(RPAB0+RFE*(1.-RPAB0))
C      WRITE(7,*) RFE, RPAB0, RLAMBA, RPSI, RATBB, RPAB
C*****
C      DE HOOFDVERGELIJKINGEN OM DE DRUK TE BEREKENEN:*****
C*****
      RHOG=RHOG0*RPAB0*RPSI/(RPAB2*(1.+REPSIL))
      RX=RHOG*RKAPPA*RYKI/(RMW*(273.15+RT+RTHETA)**RALFA)
      RZ=1.+RX*DEXP(RBETA*RX)
      RPG2=RZ*RHOG*RR*(RT+273.15)/RMW
      RHOC=RHOG*((RLAMBA/RPSI)-1.)/((1./RPAB2)-1.)
      RPC=RHOC*RDC*RCV*(RT+273.15)+RKT*((RHOC/RHOC02)**RN-1.0)/RN
C
C      RETURN
C      END
C*****
C*** oude subroutine om volume van cel te bepalen
C*****
      SUBROUTINE KVOLUM(JELNO, NODNUM, RVOL)
      IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
      INTEGER JELNO, NODNUM, IH, IK

```

```

      REAL*8 RVOL,RAR(7,4)

C
      RAR(1,1)=1.6597D-08
      RAR(1,2)=6.1942D-08
      RAR(1,3)=1.6597D-08
      RAR(1,4)=6.1942D-08
      RAR(2,1)=9.5137D-08
      RAR(2,2)=1.4048D-07
      RAR(2,3)=9.5137D-08
      RAR(2,4)=1.4048D-07
      RAR(3,1)=1.7368D-07
      RAR(3,2)=2.1902D-07
      RAR(3,3)=1.7368D-07
      RAR(3,4)=2.1902D-07
      RAR(4,1)=2.5222D-07
      RAR(4,2)=2.9756D-07
      RAR(4,3)=2.5222D-07
      RAR(4,4)=2.9756D-07
      RAR(5,1)=3.3076D-07
      RAR(5,2)=3.7610D-07
      RAR(5,3)=3.3076D-07
      RAR(5,4)=3.7610D-07
      RAR(6,1)=4.0930D-07
      RAR(6,2)=4.5464D-07
      RAR(6,3)=4.0930D-07
      RAR(6,4)=4.5464D-07
      RAR(7,1)=4.8784D-07
      RAR(7,2)=5.3318D-07
      RAR(7,3)=4.8784D-07
      RAR(7,4)=5.3318D-07
      IH=JELNO-(JELNO/100)*100
      IF ((JELNO-NODNUM).EQ.1) THEN
        IK=1
      ENDIF
      IF ((JELNO-NODNUM).EQ.0) THEN
        IK=2
      ENDIF
      IF ((JELNO-NODNUM).EQ.99) THEN
        IK=3
      ENDIF
      IF ((JELNO-NODNUM).EQ.100) THEN
        IK=4
      ENDIF
      RVOL=RAR(IH,IK)
      RETURN
      END

C*****
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software s1#+]...
C   Used subroutines
      SUBROUTINE odeint(ystart,nvar,x1,x2,eps,h1,hmin,nok,nbad,derivs,
*rkqs)
      IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
      INTEGER nbad,nok,nvar,KMAXX,MAXSTP,NMAX
      REAL*8 eps,h1,hmin,x1,x2,ystart(nvar),TINY,T
      COMMON /KTEMP/ T
      EXTERNAL derivs,rkqs
      PARAMETER (MAXSTP=10000,NMAX=50,KMAXX=200,TINY=1.D-30)
      INTEGER i,kmax,kount,nstp
      REAL*8 dxsav,h,hdid,hnext,x,xsav,dydx(NMAX),xp(KMAXX),y(NMAX),
*yp(NMAX,KMAXX),yscal(NMAX)
      COMMON /KPATH/ kmax,kount,dxsav,xp,yp
      x=x1
      h=dsign(h1,x2-x1)
      nok=0

```



```

      nbad=0
      kount=0
      do 11 i=1,nvar
        y(i)=ystart(i)
11      continue
      if (kmax.gt.0) xsav=x-2.*dxsav
      do 16 nstp=1,MAXSTP
        call derivs(x,y,T,dydx)
        do 12 i=1,nvar
          yscal(i)=dabs(y(i))+dabs(h*dydx(i))+TINY
12        continue
        if(kmax.gt.0)then
          if(dabs(x-xsav).gt.dabs(dxsav)) then
            if(kount.lt.kmax-1)then
              kount=kount+1
              xp(kount)=x
              do 13 i=1,nvar
                yp(i,kount)=y(i)
13              continue
              xsav=x
            endif
          endif
        endif
        if((x+h-x2)*(x+h-x1).gt.0.) h=x2-x
        call rkqs(y,dydx,nvar,x,h,eps,yscal,hdid,hnext,derivs)
        if(hdid.eq.h)then
          nok=nok+1
        else
          nbad=nbad+1
        endif
        if((x-x2)*(x2-x1).ge.0.)then
          do 14 i=1,nvar
            ystart(i)=y(i)
14          continue
          if(kmax.ne.0)then
            kount=kount+1
            xp(kount)=x
            do 15 i=1,nvar
              yp(i,kount)=y(i)
15            continue
          endif
          return
        endif
        if(dabs(hnext).lt.hmin) pause
        *'stepsize smaller than minimum in odeint'
        h=hnext
16      continue
      pause 'too many steps in odeint'
      return
      END
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software s1#+]..
C *****
      SUBROUTINE stifbs(y,dydx,nv,x,htry,eps,yscal,hdid,hnext,derivs)
      IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
      INTEGER nv,NMAX,KMAXX,IMAX
      REAL*8 eps,hdid,hnext,htry,x,dydx(nv),y(nv),yscal(nv),SAFE1,SAFE2,
      *REDMAX,REDMIN,TINY,SCALMX,T
      COMMON /KTEMP/T
      EXTERNAL derivs
      PARAMETER (NMAX=50,KMAXX=7,IMAX=KMAXX+1,SAFE1=.25,SAFE2=.7,
      *REDMAX=1.e-5,REDMIN=.7,TINY=1.e-30,SCALMX=.1)

```

```

CU      USES derivs,jacobn,simpr,pzextr
        INTEGER i,iq,k,kk,km,kmax,kopt,nvold,nseq(IMAX)
        REAL*8 eps1,epsold,errmax,fact,h,red,scale,work,wrkmin,xest,xnew,
        *a(IMAX),alf(KMAXX,KMAXX),dfdx(NMAX),dfdy(NMAX,NMAX),err(KMAXX),
        *yerr(NMAX),ysav(NMAX),yseq(NMAX)
        LOGICAL first,reduct
        SAVE a,alf,epsold,first,kmax,kopt,nseq,nvold,xnew
        DATA first/.true./,epsold/-1./,nvold/-1/
        DATA nseq /2,6,10,14,22,34,50,70/
        if(eps.ne.epsold.or.nv.ne.nvold)then
            hnext=-1.e29
            xnew=-1.e29
            eps1=SAFE1*eps
            a(1)=nseq(1)+1
            do 11 k=1,KMAXX
                a(k+1)=a(k)+nseq(k+1)
11         continue
            do 13 iq=2,KMAXX
                do 12 k=1,iq-1
                    alf(k,iq)=eps1*((a(k+1)-a(iq+1))/((a(iq+1)-a(1)+1.)*(2*k+
                    *1)))
12         continue
13         continue
            epsold=eps
            nvold=nv
            a(1)=nv+a(1)
            do 14 k=1,KMAXX
                a(k+1)=a(k)+nseq(k+1)
14         continue
            do 15 kopt=2,KMAXX-1
                if(a(kopt+1).gt.a(kopt)*alf(kopt-1,kopt))goto 1
15         continue
1         kmax=kopt
        endif
        h=htry
        do 16 i=1,nv
            ysav(i)=y(i)
16         continue
        call jacobn(x,y,T,dfdx,dfdy,nv,nmax)
        if(h.ne.hnext.or.x.ne.xnew)then
            first=.true.
            kopt=kmax
        endif
        reduct=.false.
2         do 18 k=1,kmax
            xnew=x+h
            if(xnew.eq.x)pause 'stepsize underflow in stifbs'
            call simpr(ysav,T,dydx,dfdx,dfdy,nmax,nv,x,h,
            *nseq(k),yseq,derivs)
            xest=(h/nseq(k))*2
            call pzextr(k,xest,yseq,y,yerr,nv,T)
            if(k.ne.1)then
                errmax=TINY
                do 17 i=1,nv
                    errmax=max(errmax,abs(yerr(i)/yscal(i)))
17         continue
                errmax=errmax/eps
                km=k-1
                err(km)=(errmax/SAFE1)**(1./(2*km+1))
            endif
            if(k.ne.1.and.(k.ge.kopt-1.or.first))then
                if(errmax.lt.1.)goto 4
                if(k.eq.kmax.or.k.eq.kopt+1)then
                    red=SAFE2/err(km)

```

```

        goto 3
      else if(k.eq.kopt)then
        if(alf(kopt-1,kopt).lt.err(km))then
          red=1./err(km)
          goto 3
        endif
      else if(kopt.eq.kmax)then
        if(alf(km,kmax-1).lt.err(km))then
          red=alf(km,kmax-1)*SAFE2/err(km)
          goto 3
        endif
      else if(alf(km,kopt).lt.err(km))then
        red=alf(km,kopt-1)/err(km)
        goto 3
      endif
    endif
18    continue
3    red=min(red,REDMIN)
    red=max(red,REDMAX)
    h=h*red
    reduct=.true.
    goto 2
4    x=xnew
    hdid=h
    first=.false.
    wrkmin=1.e35
    do 19 kk=1,km
      fact=max(err(kk),SCALMX)
      work=fact*a(kk+1)
      if(work.lt.wrkmin)then
        scale=fact
        wrkmin=work
        kopt=kk+1
      endif
19    continue
    hnext=h/scale
    if(kopt.ge.k.and.kopt.ne.kmax.and..not.reduct)then
      fact=dmax1(scale/alf(kopt-1,kopt),SCALMX)
      if(a(kopt+1)*fact.le.wrkmin)then
        hnext=h/fact
        kopt=kopt+1
      endif
    endif
    return
  END
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software 0-, .
  SUBROUTINE simpr(y,T,dydx,dfdx,dfdy,nmax,n,xs,htot,nstep,yout,
    *derivs)
    IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
    INTEGER n,nmax,nstep,NMAXX
    REAL*8 htot,xs,dfdx(n),dfdy(nmax,nmax),dydx(n),y(n),yout(n),T
    EXTERNAL derivs
    PARAMETER (NMAXX=50)
CU    USES derivs,lubksb,ludcmp
    INTEGER i,j,nn,indx(NMAXX)
    REAL*8 d,h,x,a(NMAXX,NMAXX),del(NMAXX),ytemp(NMAXX)
    h=htot/nstep
    do 12 i=1,n
      do 11 j=1,n
        a(i,j)=-h*dfdy(i,j)
11      continue
        a(i,i)=a(i,i)+1.
12    continue
    call ludcmp(a,n,NMAXX,indx,d)

```

```

do 13 i=1,n
  yout(i)=h*(dydx(i)+h*dfdx(i))
13  continue
  call lubksb(a,n,NMAXX,indx,yout)
  do 14 i=1,n
    del(i)=yout(i)
    ytemp(i)=y(i)+del(i)
14  continue
  x=xs+h
  call derivs(x,ytemp,T,yout)
  do 17 nn=2,nstep
    do 15 i=1,n
      yout(i)=h*yout(i)-del(i)
15  continue
      call lubksb(a,n,NMAXX,indx,yout)
      do 16 i=1,n
        del(i)=del(i)+2.*yout(i)
        ytemp(i)=ytemp(i)+del(i)
16  continue
      x=x+h
      call derivs(x,ytemp,T,yout)
17  continue
  do 18 i=1,n
    yout(i)=h*yout(i)-del(i)
18  continue
  call lubksb(a,n,NMAXX,indx,yout)
  do 19 i=1,n
    yout(i)=ytemp(i)+yout(i)
19  continue
  return
END
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software 0-, .
SUBROUTINE pzextr(iest,xest,yest,yz,dy,nv,T)
IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
INTEGER iest,nv,IMAX,NMAX
REAL*8 xest,dy(nv),yest(nv),yz(nv),T
PARAMETER (IMAX=13,NMAX=50)
INTEGER j,k1
REAL*8 delta,f1,f2,q,d(NMAX),qcol(NMAX,IMAX),x(IMAX)
SAVE qcol,x
x(iest)=xest
do 11 j=1,nv
  dy(j)=yest(j)
  yz(j)=yest(j)
11 continue
if(iest.eq.1) then
  do 12 j=1,nv
    qcol(j,1)=yest(j)
12  continue
else
  do 13 j=1,nv
    d(j)=yest(j)
13  continue
  do 15 k1=1,iest-1
    delta=1./(x(iest-k1)-xest)
    f1=xest*delta
    f2=x(iest-k1)*delta
    do 14 j=1,nv
      q=qcol(j,k1)
      qcol(j,k1)=dy(j)
      delta=d(j)-q
      dy(j)=f1*delta
      d(j)=f2*delta
      yz(j)=yz(j)+dy(j)

```

```

14      continue
15      continue
      do 16 j=1,nv
      qcol(j,iest)=dy(j)
16      continue
      endif
      return
      END
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software 0-,.
C *****
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software sl#+]...
      SUBROUTINE lubksb(a,n,np,indx,b)
      IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
      INTEGER n,np,indx(n)
      REAL*8 a(np,np),b(n)
      INTEGER i,ii,j,ll
      REAL*8 sum
      ii=0
      do 12 i=1,n
      ll=indx(i)
      sum=b(ll)
      b(ll)=b(i)
      if (ii.ne.0)then
      do 11 j=ii,i-1
      sum=sum-a(i,j)*b(j)
11      continue
      else if (sum.ne.0.) then
      ii=i
      endif
      b(i)=sum
12      continue
      do 14 i=n,1,-1
      sum=b(i)
      do 13 j=i+1,n
      sum=sum-a(i,j)*b(j)
13      continue
      b(i)=sum/a(i,i)
14      continue
      return
      END
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software sl#+]...
      SUBROUTINE ludcmp(a,n,np,indx,d)
      IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
      INTEGER n,np,indx(n),NMAX
      REAL*8 d,a(np,np),TINY
      PARAMETER (NMAX=500,TINY=1.0D-20)
      INTEGER i,imax,j,k
      REAL*8 aamax,dum,sum,vv(NMAX)
      d=1.
      do 12 i=1,n
      aamax=0.
      do 11 j=1,n
      if (dabs(a(i,j)).gt.aamax) aamax=dabs(a(i,j))
11      continue
      if (aamax.eq.0.) pause 'singular matrix in ludcmp'
      vv(i)=1./aamax
12      continue
      do 19 j=1,n
      do 14 i=1,j-1
      sum=a(i,j)
      do 13 k=1,i-1
      sum=sum-a(i,k)*a(k,j)
13      continue
      a(i,j)=sum

```

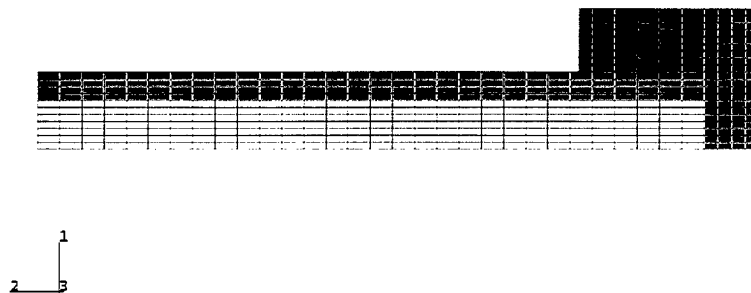
```

14      continue
        aamax=0.
        do 16 i=j,n
            sum=a(i,j)
            do 15 k=1,j-1
                sum=sum-a(i,k)*a(k,j)
15      continue
            a(i,j)=sum
            dum=vv(i)*dabs(sum)
            if (dum.ge.aamax) then
                imax=i
                aamax=dum
            endif
16      continue
        if (j.ne.imax)then
            do 17 k=1,n
                dum=a(imax,k)
                a(imax,k)=a(j,k)
                a(j,k)=dum
17      continue
            d=-d
            vv(imax)=vv(j)
        endif
        indx(j)=imax
        if(a(j,j).eq.0.)a(j,j)=TINY
        if(j.ne.n)then
            dum=1./a(j,j)
            do 18 i=j+1,n
                a(i,j)=a(i,j)*dum
18      continue
        endif
19      continue
        return
        END
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software s1#+]...
SUBROUTINE jacobn(x,y,T,dfdx,dfdy,n,nmax)
IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)
INTEGER n,nmax,i
REAL*8 x,y(*),dfdx(*),dfdy(nmax,nmax),z1,z2,z3,e1,e2,e3,T
PARAMETER(e1=26500.,e2=22200.,e3=17200.,z1=1.412997D21,
*z2=1.93216D16,z3=1.598361D12)
do 11 i=1,4
    dfdx(i)=0.
11      continue
    dfdy(1,1)=-z1*dexp(-e1/T)
    dfdy(1,2)=0.
    dfdy(1,3)=0.
    dfdy(1,4)=0.
    dfdy(2,1)=z1*dexp(-e1/T)
    dfdy(2,2)=-z2*dexp(-e2/T)
    dfdy(2,3)=0.
    dfdy(2,4)=0.
    dfdy(3,1)=0.
    dfdy(3,2)=z2*dexp(-e2/T)
    dfdy(3,3)=-2*z3*dexp(-e3/T)*y(3)
    dfdy(3,4)=0.
    dfdy(4,1)=0.
    dfdy(4,2)=0.
    dfdy(4,3)=2*z3*dexp(-e3/T)*y(3)
    dfdy(4,4)=0.
    return
    END
SUBROUTINE derivs(x,y,T,dydx)
IMPLICIT REAL*8 (A-H,O-Z)

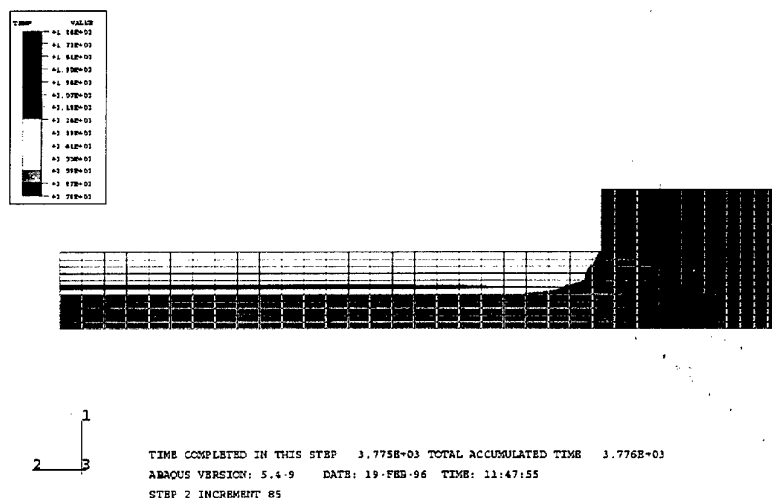
```

```
REAL*8 x,y(*),dydx(*),z1,z2,z3,e1,e2,e3,T
PARAMETER(e1=26500.,e2=22200.,e3=17200.,z1=1.412997D21,
*z2=1.93216D16,z3=1.598361D12)
dydx(1)=-z1*dexp(-e1/T)*y(1)
dydx(2)=z1*dexp(-e1/T)*y(1)-z2*dexp(-e2/T)*y(2)
dydx(3)=z2*dexp(-e2/T)*y(2)-z3*dexp(-e3/T)*(y(3)**2)
dydx(4)=z3*dexp(-e3/T)*(y(3)**2)
return
END
C (C) Copr. 1986-92 Numerical Recipes Software s1#+]...
```

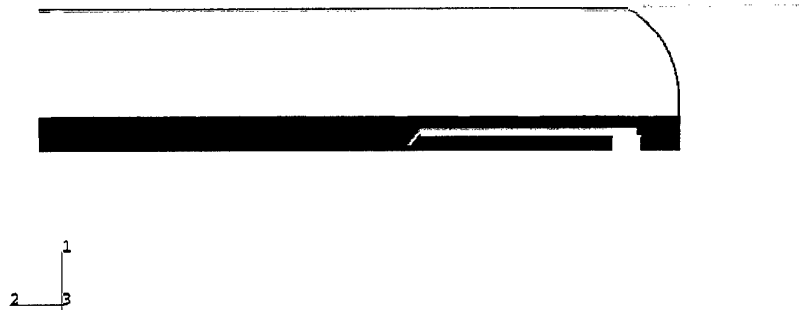
Bijlage B Visualisatie van computerberekeningen



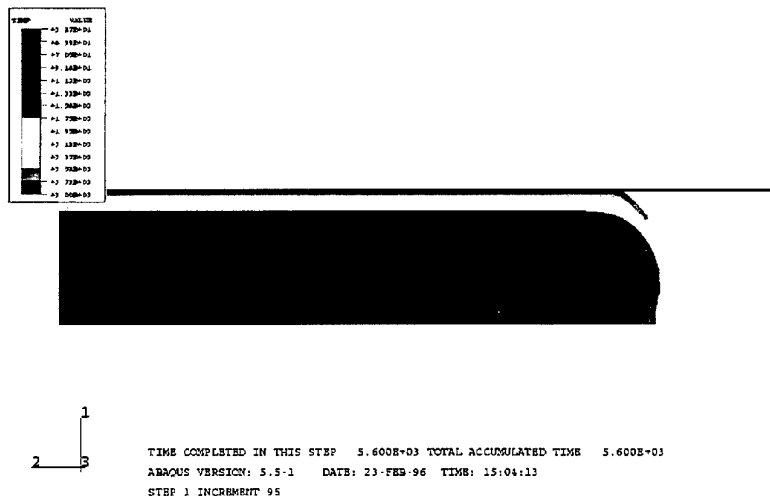
Figuur B.1: Het computergrid van de TNO-PML Cook-off buis.



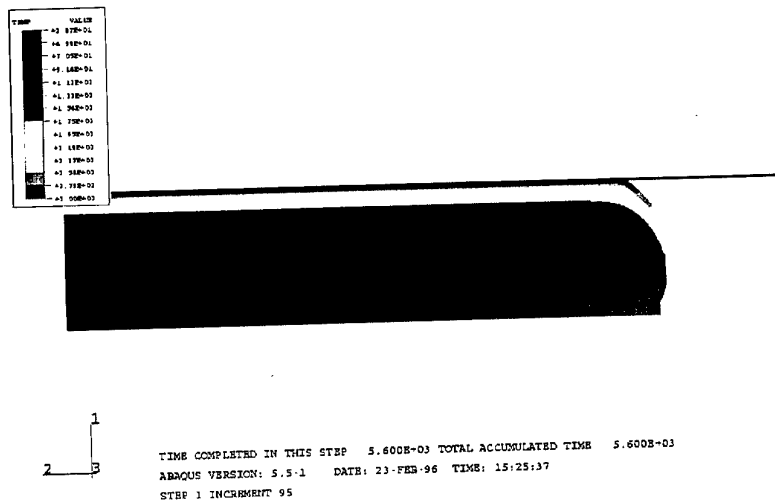
Figuur B.2: Berekende temperatuurcontourplot van van TNO-PML Cook-off buis gevuld met HMX-PBX vlak voor de thermische wegloopreactie.



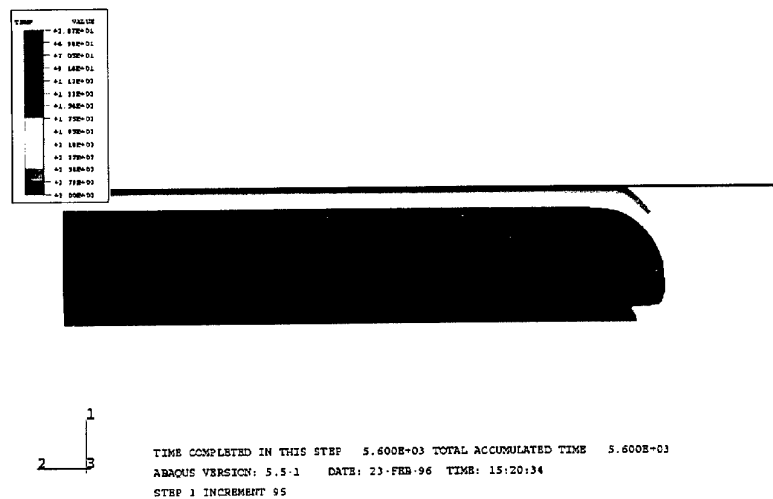
Figuur B.3: Computermodel van een raketmotor. De grijze kleur stelt de stalen casing en de SAD voor. Het gele de raket en ontstekerstuwstof. Oranje is een HTPB-warmteprotectie, blauw lucht groen een inhibitor en wit zijn twee o-ringen. Het rode kleine stukje vormt de 'bottle neck' voor het warmtetransport naar de ontsteker.



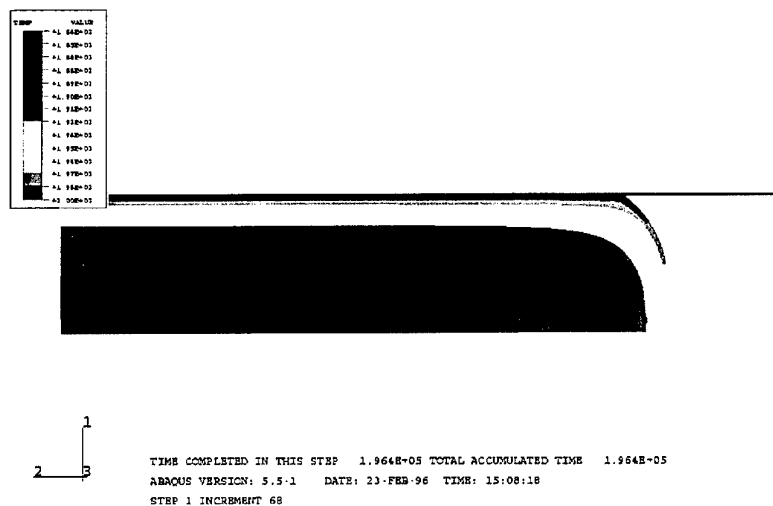
Figuur B.4: Temperatuurcontourplot van een raketmotor na 5600 sec. bij een opwarm-snelheid van 0,05 °C/sec. en $\lambda_b = 10 \text{ J/m K s}^2$.



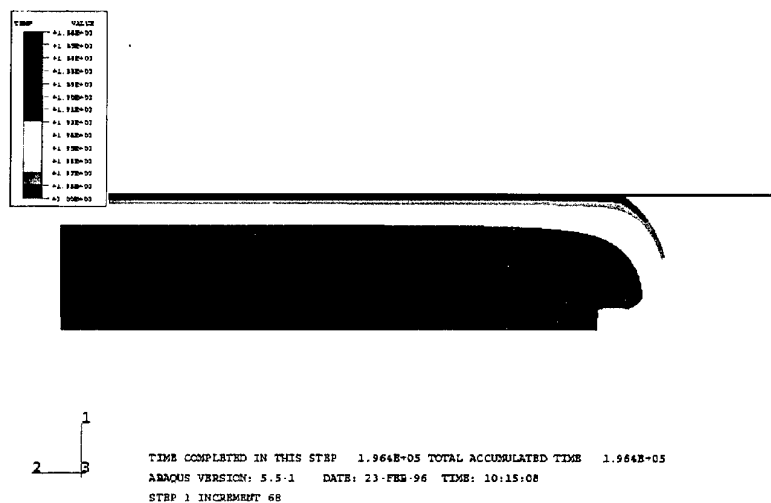
Figuur B.5: Temperatuurcontourplot van een raketmotor na 5600 sec. bij een opwarm-snelheid van 0,05 °C/sec. en $\lambda_b = 45 \text{ J/m K s}^2$.



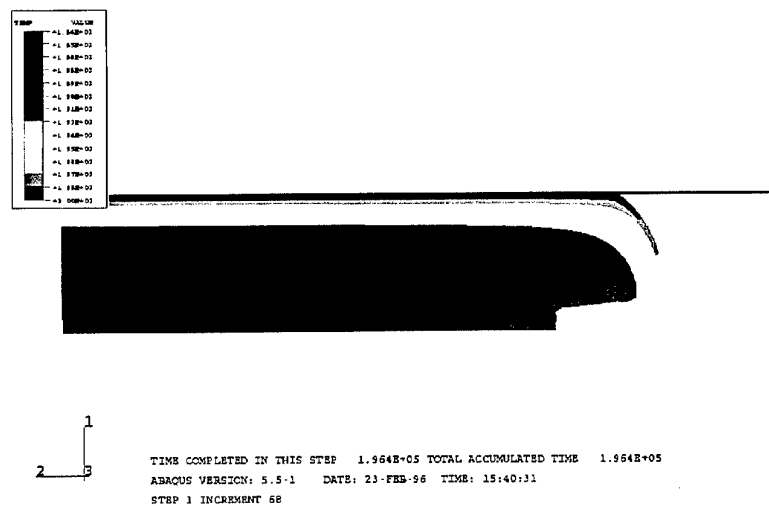
Figuur B.6: Temperatuurcontourplot van een raketmotor na 5600 sec. bij een opwarm-snelheid van 0,05 °C/sec en $\lambda_b = 390 \text{ J/m K s}^2$.



Figuur B.7: Temperatuurcontourplot van een raketmotor na 196 400 sec. bij een opwarmingsnelheid van 3,3 °C/uur en $\lambda_b = 10 \text{ J/m K s}^2$.



Figuur B.8: Temperatuurcontourplot van een raketmotor na 196 400 sec. bij een opwarmingsnelheid van 3,3 °C/uur en $\lambda_b = 45 \text{ J/m K s}^2$.

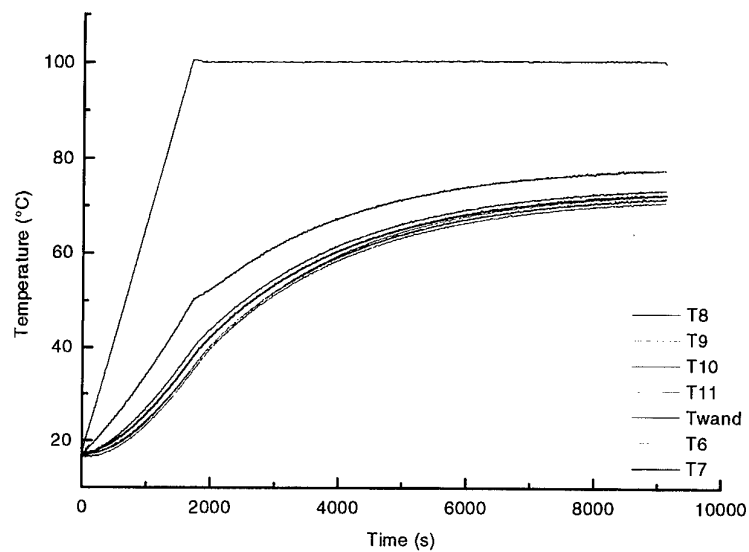


Figuur B.9: Temperatuurcontourplot van een raketmotor na 196 400 sec. bij een opwarmingsnelheid van 3,3 °C/uur en $\lambda_b = 390 \text{ J/m K s}^2$.

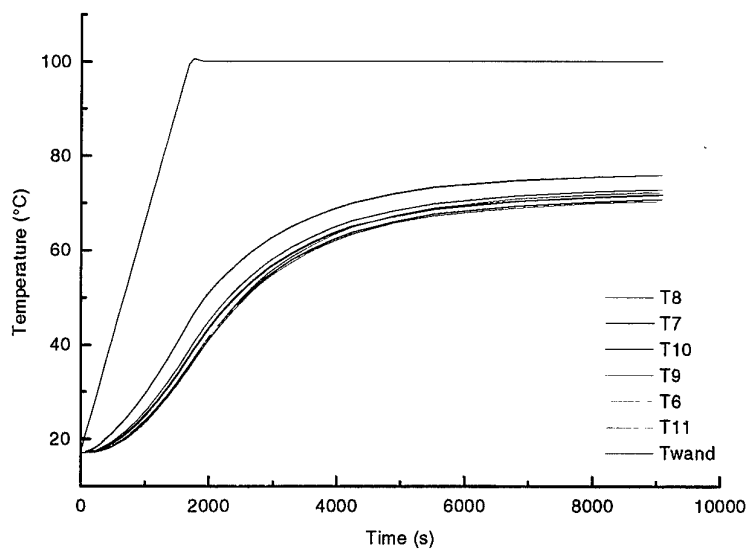


Figuur B.10: Temperatuurcontourplot van een gedeelte van een raketmotor met reactiekinetiek van een HTPB/AP-stuwstof uit de literatuur. De rode plek geeft de plaats aan waar de stuwstof het eerste ontsteekt.

Bijlage C Resultaten van karakteriseringsmetingen en simulaties



Figuur C.1: Resultaat van een karakteriseringsmeting van de TNO-PML Cook-off buis.



Figuur C.2: Resultaat van een karakteriseringsberekening van de TNO-PML Cook-off buis.

REPORT DOCUMENTATION PAGE

(MOD-NL)

1. DEFENCE REPORT NO. (MOD-NL) TD97-0296	2. RECIPIENT'S ACCESSION NO.	3. PERFORMING ORGANIZATION REPORT NO. PML 1997-A69
4. PROJECT/TASK/WORK UNIT NO. 221495221	5. CONTRACT NO. A95KL408	6. REPORT DATE April 1998
7. NUMBER OF PAGES 60 (incl. 3 annexes, excl. RDP & distribution list)	8. NUMBER OF REFERENCES 26	9. TYPE OF REPORT AND DATES COVERED Final
10. TITLE AND SUBTITLE The response of an energetic material due to an external stimulus (De responsie van energetische materialen als gevolg van externe opwarming)		
11. AUTHOR(S) J.H.G. Scholtes Dr. B.J. van der Meer		
12. PERFORMING ORGANIZATION NAME(S) AND ADDRESS(ES) TNO Prins Maurits Laboratory, P.O. Box 45, 2280 AA Rijswijk, The Netherlands Lange Kleiweg 137, Rijswijk, The Netherlands		
13. SPONSORING AGENCY NAME(S) AND ADDRESS(ES) DMKL/Afdeling Munitie P.O. Box 90822, 2509 LV The Hague, The Netherlands		
14. SUPPLEMENTARY NOTES The classification designation Ongerubriceerd is equivalent to Unclassified, Stg. Confidentieel is equivalent to Confidential.		
15. ABSTRACT (MAXIMUM 200 WORDS (1044 BYTE)) Within the scope of the project 'Feasibility study of an IM-ignitor' research has been carried out to develop a new ignitor to be used in a rocket system. In this project many aspects have been highlighted, especially on the area of Cook-off. The aspects of interest for Cook-off, the Thermal Initiation project, will be described in this report. With the computer models, partly developed during the feasibility-project, combined Thermal/chemical and thermal/chemical/pressure calculations have been performed and compared with experimental results. Using the Tarver-McGuire reaction kinetics with combined pressure simulation good results have been accomplished. The temperature distribution calculations gave a good insight in the temperature gradients of the test item and the time and temperature to explosion were fully in agreement with the experimental values. Using a pressure calculation in combination with a thermal/chemical calculation, a much better stopping criterion for a simulation is found than in a simple thermal/chemical calculation and is more in agreement with the experimental results.		
16. DESCRIPTORS Cook-off Thermal initiation Reaction kinetics Pressure Simulation		DESCRIPTORS Temperature distribution Temperature gradients
17a. SECURITY CLASSIFICATION (OF REPORT) Ongerubriceerd	17b. SECURITY CLASSIFICATION (OF PAGE) Ongerubriceerd	17c. SECURITY CLASSIFICATION (OF ABSTRACT) Ongerubriceerd
18. DISTRIBUTION AVAILABILITY STATEMENT Unlimited Distribution		17d. SECURITY CLASSIFICATION (OF TITLES) Ongerubriceerd

Distributielijst*

1	DWOO
2	HWO-KL
3*	HWO-KLu
4*	HWO-KM
5*	HWO-CO
6	DMKL/Afdeling Munitie Ing. J.A. van Gool
7	DMKLu/DM/MWFAW1 Maj. J. Paap
8	KM/WAPCONSYS LtZel ing. C.R. Timmer
9	DM&P TNO-DO
10*	DM&P TNO-DO, accountcoördinator KL
11*	TNO-FEL, Bibliotheek
12/14	Bibliotheek KMA
15*	Lid Instituuts Advies Raad PML, Prof. B. Scarlett, M.Sc.
16*	Lid Instituuts Advies Raad PML, Prof. ir. K.F. Wakker
17*	Lid Instituuts Advies Raad PML, BGen. Prof. J.M.J. Bosch
18*	Lid Instituuts Advies Raad PML, Ir. A.H.P.M. Schaeken
19	TNO-PML, Directie; daarna reserve
20	TNO-PML, Hoofd Divisie Munitietechnologie en Explosieveiligheid Ir. P.A.O.G. Korting
21/23	TNO-PML, Divisie Munitietechnologie en Explosieveiligheid, Groep Eigenschappen Energetische Materialen Dr. A.C. van der Steen, Ir. J.H.G. Scholtes en Dr. B.J. van der Meer
24	TNO-PML, Documentatie
25	TNO-PML, Archief

* De met een asterisk (*) gemerkte instanties/personen ontvangen uitsluitend de titelpagina, het managementuittreksel, de documentatiepagina en de distributielijst van het rapport.